

**Abschlußbericht zum Projektteil:
'Mesoskalige Simulation von Dynamik, Transport und Chemie
in der unteren Stratosphäre und oberen Troposphäre
MESSTRO'**

Förderkennzeichen: 01 LO 9516

A. Ebel, J. Kowol-Santen, H.-J. Bock, J. Hendricks, E. Lippert
Universität zu Köln, Institut für Geophysik und Meteorologie

1. Einleitung

1.1 Aufgabenstellung

Mit einem mesoskaligen Modellsystem sollte der Einfluß dynamischer und chemischer Prozesse auf den Spurenstoffhaushalt der Tropopausenregion, d. h. der unteren Stratosphäre und oberen Troposphäre, untersucht werden. Ziel dieser Untersuchungen war die Beurteilung der Rolle dynamischer und chemischer Prozesse insbesondere für den Ozonhaushalt dieser Region sowie die quantitative Bestimmung der Flüsse von Luftmassen und Spurenstoffen durch die Tropopause. Im Zentrum des Interesses standen dabei insbesondere Episoden, die den vertikalen Spurenstofffluß auf der Mesoskala nachhaltig beeinflussen. Zu diesen austauschintensiven dynamischen Phänomenen gehören Tropopausenfaltungen, Kaltlufttropfen und Streamer.

Da sich das in diesem Arbeitspaket verwendete mesoskalige Modellsystem EURAD (Europäisches Ausbreitungs- und Depositionsmodell) sehr gut zur Untersuchung regionaler Effekte mit hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung eignet, bildete die Analyse und die Quantifizierung des stratosphärisch-troposphärischen Austauschs für eine Vielzahl dynamisch unterschiedlicher Episoden den Schwerpunkt der Arbeiten in dem Vorhaben 'Mesoskalige Simulation von Dynamik, Transport und Chemie in der unteren Stratosphäre und oberen Troposphäre (MESSTRO)'. Entsprechend dem mesoskaligen Ansatz des Vorhabens, konzentrieren sich die Untersuchungen auf Europa und den Nordatlantik. Darüber hinaus wurden aber auch zwei Lagrangesche Verfahren für die Analyse der Dynamik der Tropopausenregion weiter- bzw. neuentwickelt und ins EURAD-Modellsystem implementiert. Der Konturadvektionsalgorithmus ermöglicht die Untersuchung feinskaliger Strukturen. Das Trajektorienverfahren dient der Beantwortung der Frage nach den physikalischen Prozessen, die für den irreversiblen Austausch von Luftmassen verantwortlich sind.

Diesen Lagrangeschen Verfahren wurden zwei Eulerschen Verfahren (Wei-Formel und Budgetanalysen) gegenübergestellt. Es wurden sowohl unterschiedliche dynamische Phänomene als auch verschiedene Jahreszeiten untersucht, um eine breitere Datenbasis für die Analyse des stratosphärisch-troposphärischen Austausches zu erstellen.

Diese Studien stellen auch einen Beitrag zur Bestimmung geeigneter Parametrisierungen

des stratosphärisch-troposphärischen Austauschs von Spurenstoffen auf der globalen Skala dar.

1.2 Voraussetzungen, wissenschaftlicher und technischer Stand zu Beginn des Vorhabens

Die Grundlage für die angesprochenen Untersuchungen bildete das dreidimensionale mesoskalige EURAD- Modellsystem, welches am Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln für troposphärische Bedingungen entwickelt und speziell für die Analyse des Transportes und der Transformation von Flugzeugemissionen modifiziert wurde.

Wesentliche Erweiterungen des ursprünglichen EURAD- Modellsystems beinhalten die Anhebung des oberen Modellrandes von 100 hPa auf 10 hPa, die Einführung dynamischer Anfangs- und Randbedingungen, Erhöhung der vertikalen Auflösung im Tropopausenniveau sowie die Neuentwicklung eines Chemiemechanismus, der sowohl troposphärischen als auch stratosphärischen Bedingungen genügt. Für die Analyse der Tropopausendynamik wurden zwei Lagrangesche Verfahren als Postprozessoren des meteorologischen Modells MM5 ins Modellsystem implementiert: ein 2-D- Konturadvektionsalgorithmus und ein 3-D- Trajektorienalgorithmus. Darüber hinaus wurden Analyse- und Auswerteprogramme entwickelt, die ein besseres Verständnis der simulierten dynamischen und chemischen Prozesse ermöglichen.

Der stratosphärisch-troposphärische Austausch wurde zunächst mit dem MM5 untersucht, das für die im Vorhaben behandelte Fragestellung der Luftmassenflüsse die Formulierung von Wei (1987) beinhaltet. Das Chemie-Transport-Modell beinhaltet ein Modul zur Separation verschiedener chemischer und dynamischer Prozesse, welches es insbesondere ermöglicht, die vertikalen Flüsse von Spurenstoffen zu berechnen.

Die Boxversion des Chemiemoduls, die ursprünglich dazu gedacht war, Änderungen im chemischen Teil des EURAD- Modellsystems separat testen zu können, hat sich als wichtiges Werkzeug für den im Rahmen des Vorhabens durchgeführten Modellvergleich erwiesen.

1.3 Planung und Ablauf des Vorhabens

Der Ablauf des Vorhabens erfolgte entsprechend der im Antrag dargestellten Planung. Im einzelnen war vorgesehen und wurde durchgeführt:

1. Übernahme von Modellen und Modulen; Einarbeitung; strukturelle Anpassung der Modelle an das zu behandelnde Problem,
2. Untersuchung geeigneter Rand- und Anfangsbedingungen,
3. Episodensimulationen, besonders für Episoden, während derer Tropopausenfaltungen aufgetreten sind oder für die Messungen vorliegen,
4. Analyse verschiedener Episoden hinsichtlich des Einflusses der Wetterlagen und Hintergrundfelder auf den Ozonhaushalt in der unteren Stratosphäre und oberen Troposphäre,

5. Untersuchung des Vertikaltransportes bei Intrusionen stratosphärischer Luft in die Troposphäre speziell im Hinblick auf das Ozon,
6. Simulation chemischer Umwandlungsprozesse bei austauschintensiven Wetterlagen und damit verbundenen variablen Hintergrundfeldern der Spurengase,
7. Quantifizierung des aufwärts und abwärts gerichteten Spurenstoffflusses bei austauschintensiven Ereignissen.

1.4 Zusammenarbeit

Innerhalb des Verbundprogramms wurden detaillierte Studien zum Vergleich der verschiedenen innerhalb des OFP zum Einsatz kommenden Modelle durchgeführt. Dabei wurde das EURAD- Chemiemodul anderen Chemie- Modellen unter der Koordination des Instituts für stratosphärische Chemie (ICG-1) des Forschungszentrums Jülich gegenübergestellt. Der Modellvergleich zeigte, daß sich die Resultate des Chemiemechanismus des EURAD- Modellsystems nur geringfügig von den Ergebnissen anderer Modelle unterscheiden.

In Kooperation mit der Universität Heidelberg (Zahn et al.) wurden zum einen Meßdaten der Transall zur Modellvalidierung genutzt und zum anderen die Modellergebnisse zur Interpretation der Messungen herangezogen.

Neben der Zusammenarbeit mit Partnern im Verbundprogramm bestand auch eine enge Zusammenarbeit mit anderen Arbeitsgruppen am Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, insbesondere mit dem EURAD- und dem COMMA-Projekt (COMMA: COlogne Model of the Middle Atmosphere).

Im Bereich der Modellierung der Atmosphärenchemie und der mesoskaligen Meteorologie bestand ein reger Austausch mit der EURAD-Gruppe, die darüber hinaus Bodenemissionen und ECMWF Analysen zur Verfügung stellte.

Detaillierte Modellvalidierung wurde ebenfalls in Zusammenarbeit mit dem EC Vorhaben 'TOASTE-C' durchgeführt. Hier bestand auch eine Kooperation bzgl. der Analyse der Luftmassen- und Spurenstoffflüsse durch die Tropopause. In Zusammenarbeit mit dem DFG-Projekt 'Grundlagen und Auswirkung der Luft- und Raumfahrt auf die Atmosphäre' wurde die Wei-Formel (s.u.) in Form eines Moduls ins MM5 implementiert.

Die Universität zu Köln stellte dem Vorhaben Speicherkapazität für die anfallenden großen Datenmengen zur Verfügung. Außerdem half das Universitätsrechenzentrum bei der Visualisierung der Modellergebnisse.

Die Rechnungen mit dem 3-D Modell wurden auf der CRAY Y-MP/864 und auf der CRAY T90 des HLRZ Jülich durchgeführt.

2. Ergebnisse

2.1 Das Modell

Die Modellrechnungen wurden mit einer auf die speziellen Gegebenheiten der Tropopausenregion angepaßten Version des EURAD- Modellsystems (Abb. 1) durchgeführt. Das EURAD- Modellsystem besteht aus zahlreichen Modulen. Die meisten davon dienen als Prä- oder Postprozessoren für eines der drei Hauptmodule: das Emissionsmodell EEM, das meteorologische Modell MM5 oder das Chemie-Transport-Modell CTM.

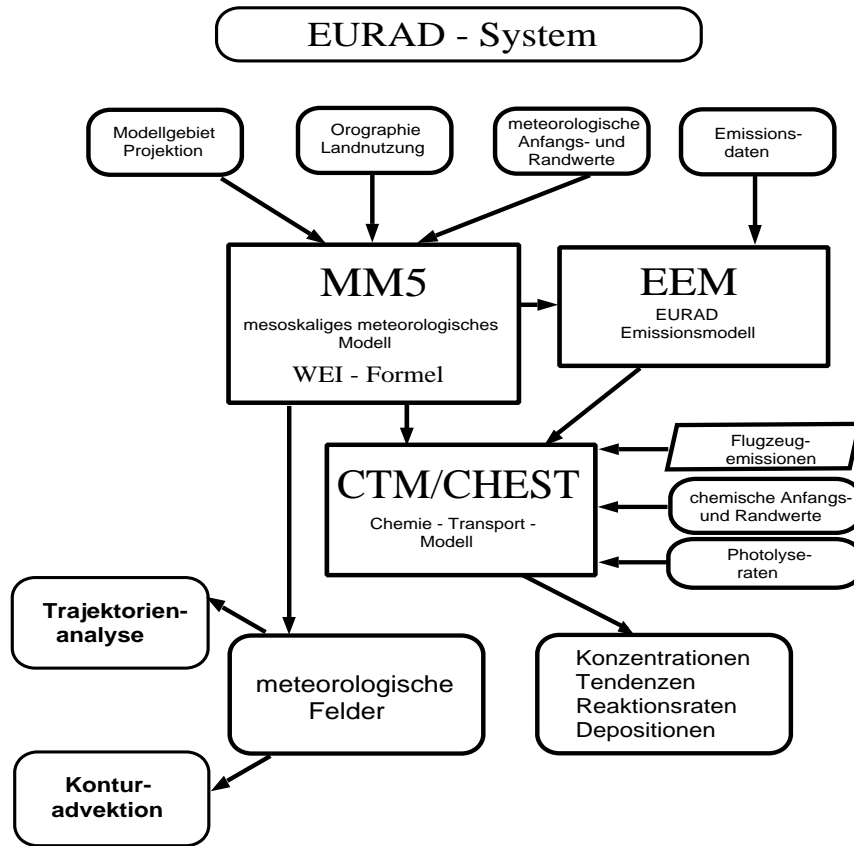


Abbildung 1: Schematische Darstellung des EURAD- Modellsystems

2.1.1 Das mesoskalige meteorologische Modell MM5

Das mesoskalige, meteorologische Modell MM5 (Penn State/NCAR Mesoscale Model/Version 5) ist die fünfte Version des an der Pennsylvania University und am National Center for Atmospheric Research (NCAR) entwickelten meteorologischen Modells (*Anthes et al., 1987, Dudhia, 1993*). Als Rand- und Anfangswerte werden Analysen des European Center for Medium Range Weather Forecast (ECMWF) verwendet. Diese Analysedaten liegen mit einer horizontalen Auflösung von etwa $1.5^\circ \times 1.5^\circ$ am Boden und auf vierzehn Druckniveaus zwischen 1000 und 10 hPa vor.

Das MM5 mit hydrostatischer Option berechnet als prognostische Variablen die horizontalen Windkomponenten, die Temperatur, den Bodendruck, die spezifische Feuchte, den Regenwassergehalt, den Wolkenwassergehalt, den Eisgehalt und Schnee. Für die Behandlung von Wolkenprozessen wird die Kuo-Cumulus-Parametrisierung (Kuo, 1974) verwendet. Bei der Formulierung der planetaren Grenzschicht wird das hochauflösende Blackadar-Modell (Blackadar, 1979) verwendet.

Das MM5 ist horizontal mit einem Arakawa-B Gitter diskretisiert (Abb. 2). Auf den Eckpunkten einer Gitterbox, den sogenannten dot-Punkten, werden die Windfelder, im Inneren der Box, auf den sogenannten cross-Punkten, alle anderen Variablen berechnet. Die vertikale Struktur wird durch Sigmakoordinaten beschrieben, wobei $\sigma = \frac{p-p_t}{p_s-p_t}$, p_t der Druck am Modelloberrand bei 10 hPa, p_s der Druck am Boden und p der Druck in der jeweiligen Modellschicht ist (Abb. 2). Die Windkomponenten werden auf den 30 Sigmaniveaus berechnet. Alle anderen Variablen werden auf dazwischen gemittelten Sigmaniveaus prognostiziert.

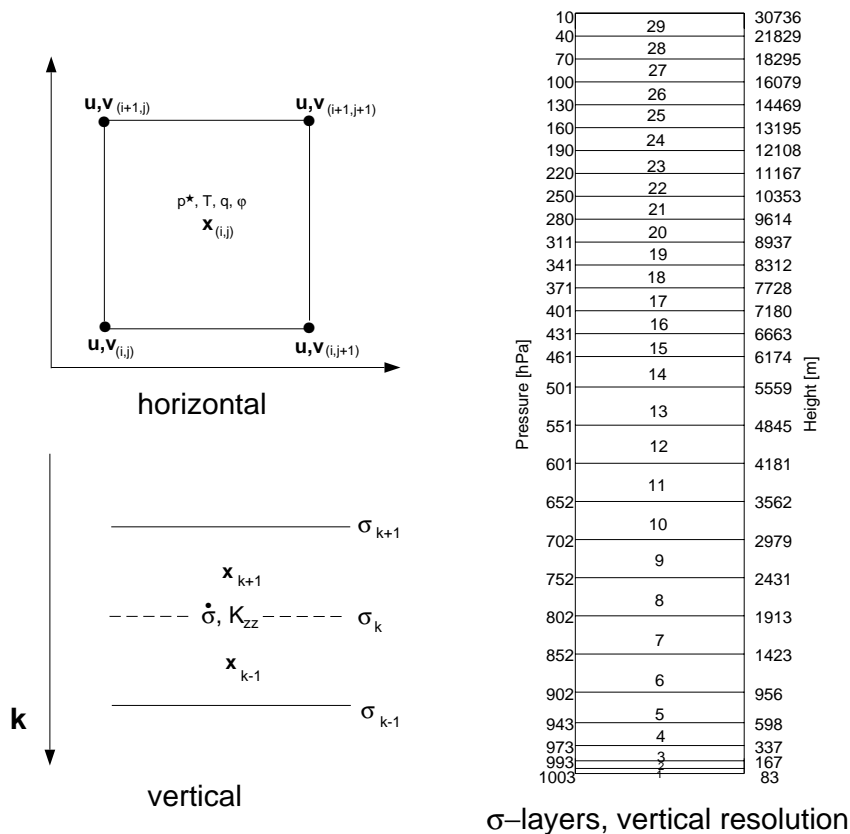


Abbildung 2: Schematische Darstellung der horizontalen und vertikalen Gitterstruktur des MM5.

Die vom MM5 berechneten meteorologischen Parameter dienen als Eingabedaten für das Chemie-Transport-Modell CTM.

2.1.2 Das Chemie–Transport–Modell CTM

Das Chemie–Transport–Modell CTM (*EURAD, 1989; Hass, 1991*) behandelt in der im Projektzeitraum verwendeten Version CHEST (*Lippert, 1996*) die relevanten physikalischen und chemischen Prozesse der Troposphäre und der unteren Stratosphäre. Für N chemische Konstituenten wird dafür in jeder Gitterbox die folgende Erhaltungsgleichung gelöst:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \nabla (\nabla \underline{\underline{K}}C_i - \underline{u}C_i) + P_i - L_i + E_i + \left. \frac{\partial C_i}{\partial t} \right|_{clouds} + \left. \frac{\partial C_i}{\partial t} \right|_{drydep}. \quad (1)$$

Sie berechnet die zeitliche Änderung der Konzentration C_i eines Spurenstoffes $i \in \{1, \dots, N\}$ unter Berücksichtigung der Diffusion ($\nabla \underline{\underline{K}}C_i$), der Advektion ($\underline{u}C_i$), der chemischen Produktions- (P_i) und Verlustraten (L_i), der Emissionsraten (E_i) sowie der Konzentrationsänderung aufgrund von Wolkeneffekten ($\left. \frac{\partial C_i}{\partial t} \right|_{clouds}$) und trockener Deposition ($\left. \frac{\partial C_i}{\partial t} \right|_{drydep}$).

Zur Lösung der Advektionsgleichung wird das Verfahren von *Smolarkiewicz (1983)* verwendet, das zwei antidiffusive Korrekturterme beinhaltet. Der subskalige vertikale Transport wurde nach dem K–Ansatz von *Louis (1979)* parametrisiert. Die Wolkeneffekte werden nach dem Ansatz von *Walcek und Taylor (1986)* behandelt. Die Emissionsraten setzen sich aus volumeninternen Boden- und Flugzeugemissionen zusammen.

Das Modell beinhaltet in der CHEST–Version 60 Spezies, die in 160 Gasphasenreaktionen behandelt werden, hinzu kommen 26 Photolysereaktionen und 2 heterogene Reaktionen. Die behandelten Spezies sind in der folgenden Tabelle 1 aufgelistet:

2.1.2.1 Initialisierung und Randbehandlung im CTM

Die Initialisierung der Konzentrationsfelder chemisch relevanter Spurenstoffe ist ebenso wie die Behandlung der Ränder in einem mesoskaligen, flächenbegrenzten Chemie–Transport–Modell von großer Bedeutung, da sie sich erheblich auf die Modellergebnisse auswirken kann (*z.B. Petry, 1993*). Zur Anwendung des EURAD-Modellsystems im Tropopausenbereich wurde das Initialisierungsverfahren des CTM's modifiziert. Bei der ursprünglichen statischen Initialisierungsmethode wurden Vertikalprofile der einzelnen chemisch relevanten Spurenstoffe vorgegeben. Hierbei wurde angenommen, daß die Anfangswerte horizontal homogen verteilt sind. Dies bedeutet, daß innerhalb des gesamten Modellgebietes in jeder Gitterbox einer Modellschicht die gleiche Anfangskonzentration einer Spezies unabhängig von der meteorologischen Situation verwendet wurde. Ebenso wurde an den Modellrändern entsprechend der jeweiligen Modellschicht das einem festen Höhenprofil zugeordnete Hintergrundfeld eingemischt. Diese Methode mag für die Behandlung der planetaren Grenzschicht ausreichend sein, für die obere Troposphäre und unterste Stratosphäre ist sie jedoch unzureichend. Ähnlich wie bereits Ozon über die potentielle Vorticity nach dem sog. *Danielsen- Ansatz (Danielsen et al., 1987)* im EURAD-Modellsystem initialisiert wird (*z.B. Ebel et al., 1991; Oberreuter, 1992*) können die Konzentrationsfelder anderer Spezies im CTM initiiert werden. Da die potentielle Vorticity oberhalb der Tropopause im Mittel bis zu einer Höhe von etwa 30 km monoton zunimmt, kann in diesem Höhenbereich die PV als Vertikalkoordinate eingeführt werden, die eine

	CHEST
Chemische Verbindungen	60
anorganische	31
stabil	23
intermediär	5
resistent	3
organische	29
Alkane	3
Alkene	4
Aromaten	1
Karbonyle	5
organ. Nitrate	2
organ. Peroxide	3
organ. Säuren	2
Peroxyradikale	9
Photolysereaktionen	26
Gasphasenreaktionen	160
heterogene Reaktionen	2

Tabelle 1: Anzahl der chemischen Konstituenten und der Reaktionen des CHEST– Chemiemechanismus.

eindeutige Zuordnung eines jeweiligen chemischen Regimes zur dynamischen Situation ermöglicht. Hierbei wird die Annahme gemacht, daß einem jeweiligen PV- Niveau eine konstante Komposition der chemischen Spurenstoffe zuzuordnen ist. Die Vertikalprofile der zu initiiierenden Spezies liegen hierzu in PV- Koordinaten vor. Unterhalb der Tropopause werden die Vertikalprofile bei der Initialisierung bzw. Randwertbehandlung in Abhängigkeit von der Lage der Tropopause gestreckt bzw. gestaucht. Die Behandlung der Ränder, d.h. der Flüsse ins Modellgebiet hinein, erfolgt nach dem gleichen Verfahren. Eine genauere Beschreibung dieser Methode ist zu finden bei *Lippert (1996)*.

Auf diese Weise werden die chemischen Rand- und Anfangswerte der individuellen dynamischen Situation angepaßt. Durch die Kopplung der Konzentrationsfelder chemisch relevanter Spurenstoffe an die potentielle Vorticity wurde die Verwendung statischer Rand- und Anfangsbedingungen der Konzentrationsverteilungen zugunsten von dynamisch angepaßten Bedingungen verworfen. Damit erreicht man eine wesentliche Verbesserung der Behandlung der Hintergrundfelder relevanter Spurenstoffe im Modellsystem und berücksichtigt zudem dynamische Prozesse bei der Wahl der Spurenstoffzusammensetzung, welche auf der globalen Skala also außerhalb des mesoskaligen Modellgebietes ablaufen (*Lippert,*

2.1.3 Erweiterungen des Modellsystems

Für die Analyse der Transport- und Austauschprozesse in der Tropopausenregion und insbesondere für die quantitative Bestimmung der Luftmassen- und Ozonflüsse durch die Tropopause wurde das EURAD- Modellsystem um zwei Lagrangesche Verfahren (Trajektorienanalyse und Konturadvektion) und zwei Eulersche Verfahren (Wei-Formel und Budgetanalysen) erweitert. Dabei wurde der Konturadvektionsalgorithmus und die Wei-Formel neu ins Modellsystem implementiert, während der Trajektorienalgorithmus und die Budgetanalysen weiterentwickelt wurden (*Oberreuter, 1992; Meyer, 1997; Kowol-Santen, 1998*).

2.1.3.1 Die Wei-Formel

Als diagnostisches Hilfsmittel zur Quantifizierung des stratosphärisch-troposphärischen Austauschs vom Eulerschen Standpunkt implementierte *Meyer (1997)* die Wei-Formel (*Wei, 1987*) in das MM5:

$$F(\rho) = \left[\rho J_{\theta} \left(\frac{d\theta}{dt} - \frac{\partial \theta_{TP}}{\partial t} - \mathbf{U} \cdot \nabla_{\theta} \theta_{TP} \right) \right]_{\theta_{TP}} . \quad (2)$$

Dabei ist ρ die Dichte, θ die potentielle Temperatur, J_{θ} die Jacobi-Matrix der Koordinatentransformation von (x, y, z) - ins (x, y, θ) -System und \mathbf{U} das horizontale Windfeld. Bei der Berechnung von Flüssen durch eine interne wohldefinierte Fläche (TP) in einem beliebigen Fluid berücksichtigt die Wei-Formel diabatische Prozesse, die lokale, vertikale Änderung der Lage der Tropopause sowie den Transport entlang isentroper Flächen.

2.1.3.2 Der Trajektorienalgorithmus

Eine der Lagrangeschen Methoden zur Analyse des Transportes in der Tropopausenregion ist der Trajektorienalgorithmus. Das Trajektorienprogramm des EURAD- Modellsystems ist ein Postprozessor des mesoskaligen meteorologischen Modells MM5. Neben der Partikelposition, die standardmäßig alle zehn Minuten bestimmt wird, werden anhand der MM5-Ergebnisse die potentielle Temperatur, die potentielle Vorticity, die Richardson Zahl und die relative Feuchte entlang der Trajektorie berechnet.

Für die quantitative Bestimmung des Transportes von Luftmassen durch die Tropopause wird die jeweilig analysierte dynamische Region in eine dreidimensionale Box eingebettet (s. Abb. 3). Die Bestimmung der vertikalen und horizontalen Erstreckung der Box erfolgt dabei anhand der Analyse der 2-PVU-Fläche. Auf jedem der innerhalb dieser Box liegenden Gitterpunkte wird alle 24, 12 bzw. 6 Stunden eine Vorwärtstrajektorie gestartet. Dabei wird mit Hilfe der vom MM5 prognostizierten geopotentiellen Höhe der isobaren

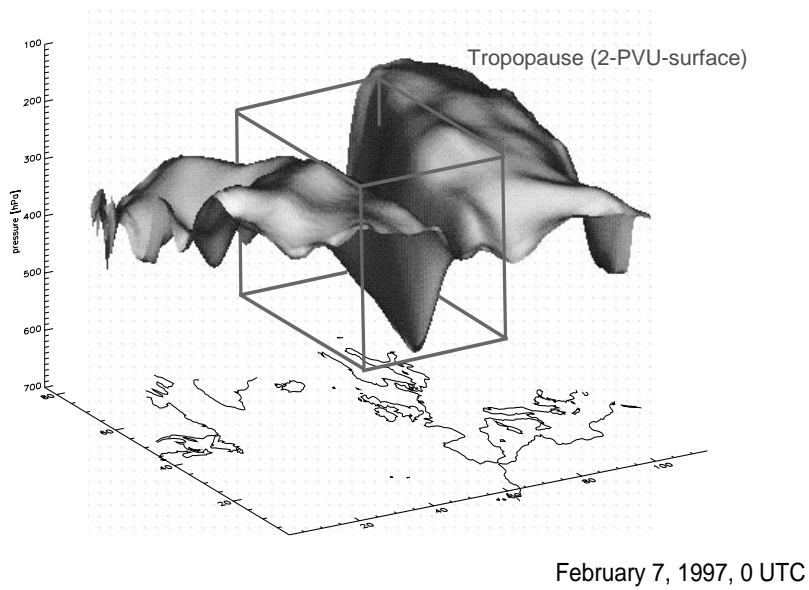
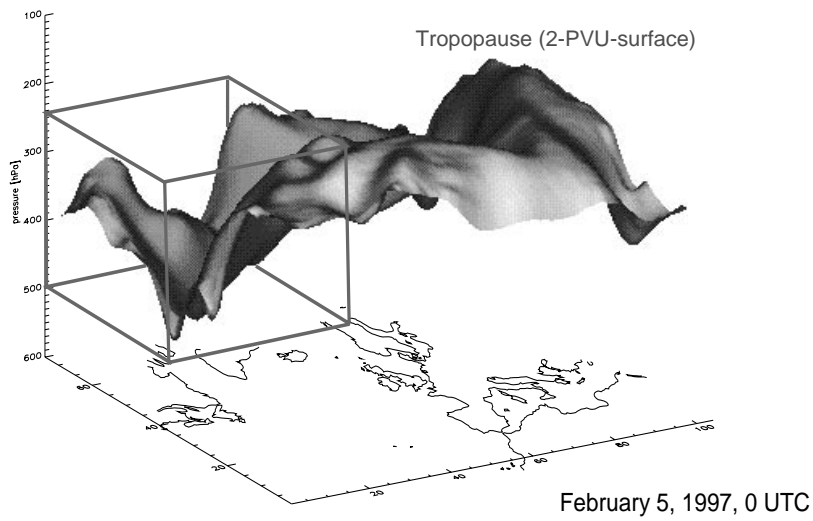


Abbildung 3: Schematische Darstellung der Einbettung des Trog in eine dreidimensionale Box, die das Gebiet der Trajektorienstartpunkte beschreibt, am Beispiel des 5. und 7. Februar 1997 jeweils um 0 UTC. Die Box wird mit dem Trog mitbewegt, wobei ihr Volumen erhalten bleibt.

Flächen sowie der Dichtefelder dem jeweiligen Startpunkt eine Anfangsmasse zugeordnet. Entlang der Trajektorien wird die Entwicklung der potentiellen Vorticity untersucht. Auf diese Weise kann bestimmt werden, welcher Anteil der jeweils betrachteten Luftmassen in dem betrachteten Zeitraum die Tropopause abwärts bzw. aufwärts durchquert hat. Die Box wird im Verlauf der Episode mit dem Trog mitbewegt.

Zu den bisher kontrovers diskutierten Fragen gehört die Frage nach der Rolle der für den Austausch von Luftmassen verantwortlichen Prozessen. Die Voraussetzung dafür ist die Änderung der potentiellen Vorticity einer Luftmasse, die durch diabatische und / oder turbulent diffusive Prozesse verursacht werden kann. Aus diesem Grund wurde an den Trajektorienalgorithmus eine Tendenzanalyse der potentiellen Vorticity gekoppelt.

Da die potentielle Vorticity vom MM5 nicht als prognostische Variable berechnet wird, wurde die Tendenzgleichung numerisch folgendermaßen behandelt:

$$\begin{aligned} \frac{\partial PV}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{1}{\rho} (\nabla \times \vec{u} + f\vec{k}) \cdot \nabla \theta \right) = \\ & \frac{1}{\rho} \left(\nabla \times \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} \right) \cdot \nabla \theta + \frac{1}{\rho} (\nabla \times \vec{u} + f\vec{k}) \cdot \nabla \left(\frac{\partial \theta}{\partial t} \right) - \frac{PV}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial t}. \end{aligned} \quad (3)$$

Hierbei ist \vec{u} der Windvektor, θ die potentielle Temperatur, f die Corioliskraft und ρ die Dichte. Details zu der numerischen Behandlung der PV-Tendenzgleichung findet man bei *Kowol-Santen (1998)*. Auf diese Weise kann zwischen dem Beitrag turbulent diffusiver und diabatischer Prozesse zur Änderung der potentiellen Vorticity unterschieden werden.

2.1.3.3 Der Konturadvektionsalgorithmus

Das zweidimensionale Verfahren der Konturadvektion ermöglicht die Analyse des Spurenstofftransports und bietet eine sehr hohe Auflösung von feinskaligen Strukturen, die typisch sind für chaotischen Transport. Im Rahmen unserer Arbeiten wurde die Konturadvektion anhand der theoretischen Arbeiten von *Dritschel (1988)* parametrisiert.

Die Initialisierung der Konturen erfolgt anhand der durch das MM5 simulierten Felder der potentiellen Vorticity auf isentropen Flächen (Abb. 4). Die modellierten Windfelder werden alle sechs Stunden eingelesen und mit Hilfe einer bikubischen Spline-Interpolation auf die Positionen der Knoten interpoliert. Der Advektionszeitschritt beträgt eine Stunde. Die Advektion wird nach dem Runge-Kutta-Schema vierter Ordnung berechnet. Dieses Verfahren ist notwendig, um eine hohe zeitliche Genauigkeit zu erzielen. Am Modellrand werden Tangentialwinde verwendet. Das Modellgebiet wird dabei so gewählt, daß die analysierte Region während der gesamten Simulationszeit von Randeffekten möglichst unbeeinflusst bleibt.

Zahlreiche Validierungsstudien (*Kowol-Santen, 1998; Ravetta et al., 1998; Klasen, 1998*) haben gezeigt, daß mesoskalige Modellierung deutlich bessere Voraussetzungen für die Analyse von Transportprozessen in der Tropopausenregion der mittleren Breiten bietet als globale Modelle, die zumeist eine grobe horizontale Auflösung ($\geq (1^\circ \times 1^\circ)$) verwenden. Dies ermöglicht insbesondere eine im Vergleich zu bisherigen Studien genauere Initialisierung der Konturadvektion. Desweiteren liefert die Parametrisierung der Konturadvektion als Postprozessor vom MM5 höher aufgelöste Windfelder, was die Genauigkeit erhöht und

die Notwendigkeit der Interpolation reduziert. Dieses wurde von zahlreichen Sensitivitätsstudien bestätigt (Kowol-Santen, 1998).

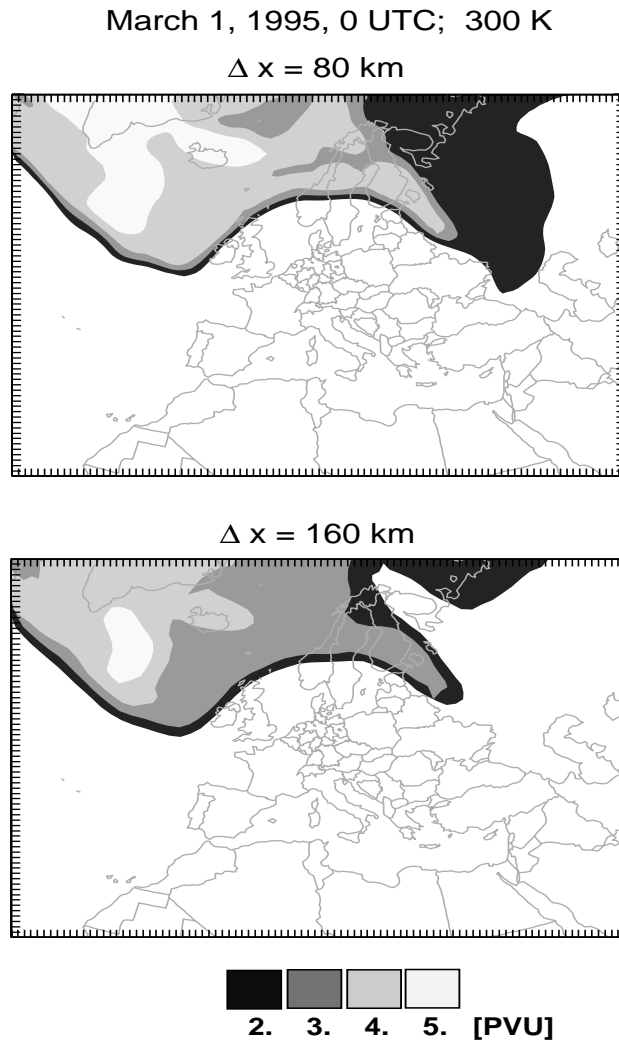
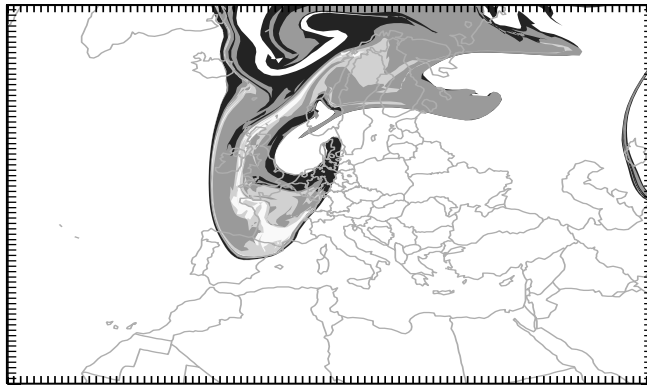


Abbildung 4: PV-Konturen 2, 3, 4 und 5 PVU auf der 300 K Fläche am 1. März 1995 um 0 UTC, die zur Initialisierung der Konturadvektionsroutine verwendet wurden. Oben: horizontale Auflösung von 80 km; unten: horizontale Auflösung von 160 km.

Abbildung 4 zeigt die Initialisierung der Konturadvektion am Beispiel der PV-Konturen 2, 3, 4 und 5 PVU auf der 300 K Fläche am 1. März 1995 um 0 UTC. Ein Vergleich zwischen den beiden Auflösungen zeigt, daß bei einer Gitterweite von 160 km die starken Gradienten der potentiellen Vorticity in der Tropopausenregion nicht korrekt aufgelöst werden. Insbesondere wird dabei die Ausdehnung der 4- und der 5-PVU-Fläche, die sich vom Nordwestrand des Modellgebietes bis nach Skandinavien bzw. bis nach Grönland erstrecken, unscharf wiedergegeben. Desweiteren wird die sich über die baltischen Staaten und Rußland erstreckende 2-PVU-Fläche bei einer Simulation mit einer Gitterweite von 160 km vom Modell nicht aufgelöst.

March 4, 1995, 0 UTC; 300 K

$\Delta x = 80 \text{ km}$



$\Delta x = 160 \text{ km}$

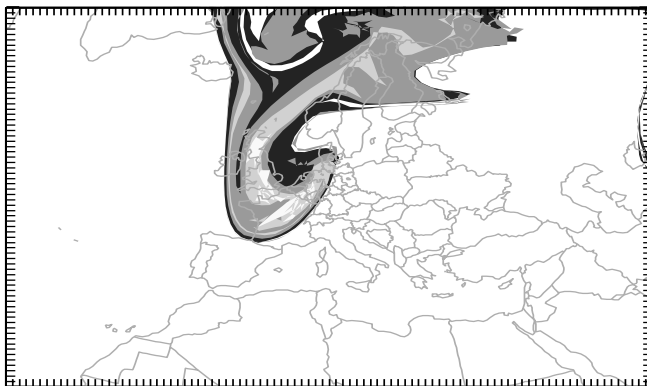


Abbildung 5: PV-Konturen 2, 3, 4 und 5 PVU auf der 300 K Fläche am 4. März 1995 nach 3 Tagen Advektion. Oben: bei einer horizontalen Auflösung von 80 km; unten: horizontale Auflösung von 160 km.

Ein Vergleich der Ergebnisse der Konturadvektionsrechnungen auf diesen beiden Gittern nach 3 Tagen Advektion am 4. März um 0 UTC (s. Abb. 5) zeigt, daß bei der höheren Auflösung an den südlichen Ausläufern des immer schmäler werdenden Troges ein zyklonales Einrollen der Trogspitze einsetzt. Dabei liegt die Trogbasis zu diesem Zeitpunkt über dem Iberischen Randgebirge. Gleichzeitig dringen an der Ostflanke des Troges zwei Zungen stratosphärischer Luftmassen nach Osten vor. Diese beiden Phänomene – sowohl das Einrollen der Trogspitze als auch das ostwärts gerichtete Vordringen der beiden Zungen – sind bei den Konturadvektionsrechnungen auf dem groben horizontalen Gitter deutlich schwächer ausgeprägt. Die Trogbasis liegt hier etwa 300 km weiter nördlich vor der Nordküste Spaniens. Die synoptische Situation analysiert vom Deutschen Wetterdienst

im Europäischen Wetterbericht zeigt, daß die Trogbasis zu diesem Zeitpunkt über Mittelspanien lag. Ebenso zeigt die sowohl anhand der MM5-Ergebnisse als auch die vom ECMWF berechnete potentielle Vorticity, daß die 2-PVU-Fläche auf der 300 K Fläche bis nach Spanien vordringt (Abb. 5). Dieser Vergleich weist darauf hin, daß ein so grobes horizontales Gitter, wie es zumeist auch in globalen Modellen verwendet wird, nicht ausreicht, um die Dynamik der Tropopausenregion der mittleren Breiten mit Hilfe der Konturadvektion richtig zu erfassen.

Ein weiterer Unterschied zwischen den Konturadvektionsrechnungen auf einem Gitter mit 160 km Auflösung und einem Gitter mit 80 km Auflösung zeigte sich in der Struktur der einzelnen Konturen, die bei einer Auflösung von 160 km starke Kanten aufweisen. Dies bedeutet, daß die Anzahl der Punkte, durch die die Konturen beschrieben werden, zu gering ist.

Hier muß der Parameter μ der Knotendichtefunktion ρ reduziert werden, um die Anzahl der Knoten entlang der Kontur zu erhöhen (*Kowol-Santen, 1998*).

2.1.3.4 Budgetanalysen

Für die einzelnen im CTM behandelten Spezies können Budgetanalysen durchgeführt werden. Dabei wird die zeitliche Änderung der Masse (M_i) einer Spezies i durch die Integration der lokalen Konzentrationsänderungen über das jeweils betrachtete Modellgebiet berechnet. Die absolute Änderung der Masse (ΔM_i) innerhalb einer definierten Periode ist dann gegeben durch:

$$\Delta M_i|_{t_0}^t = \int_{t_0}^t \frac{\partial M_i}{\partial t} dt. \quad (4)$$

Dabei kann der Term $\frac{\partial M_i}{\partial t}$ in die einzelnen Beiträge der verschiedenen chemischen und dynamischen Prozesse aufgeteilt werden:

$$\int_{t_0}^t \frac{\partial M_i}{\partial t} dt = \int_{t_0}^t \left(\sum \frac{\partial M_i^{process}}{\partial t} \right) dt. \quad (5)$$

Auf diese Weise kann zwischen den Beiträgen dynamischer und chemischer Prozesse zur Änderung des Spurenstoffhaushaltes insbesondere in der hier analysierten Tropopausenregion unterschieden werden und der vertikale Transport von Spurenstoffen quantitativ erfaßt werden.

2.1.4 Modellvalidierung

In Zusammenarbeit mit der Universität Heidelberg wurden Studien zur Evaluierung der Dynamik und Chemie der Tropopausenregion durchgeführt. Die gute Übereinstimmung zwischen Messungen und Modellergebnissen wird exemplarisch für den 7. Februar 1995 anhand der Ost-West-Komponente des Horizontalwindes in Abbildung 6 verdeutlicht. Es handelt sich hierbei um Messungen der Transall entlang der Flugroute von Kiruna

nach Süddeutschland, die zwischen 6:30 und 13:00 durchgeführt wurden, sowie die auf das Flugprofil interpolierten Simulationsergebnisse des MM5. Auf diese Weise konnte die Eignung des Modells zur Simulation der Tropopausendynamik bestätigt werden.

Zu den am besten geeigneten Indikatoren stratosphärischer Luftmassen gehören Ozon und die potentielle Vorticity (z.B. *Danielsen, 1968*). Der Vergleich des gemessenen Ozonmischungsverhältnisses mit der anhand der MM5-Ergebnisse berechneten potentiellen Vorticity zeigt sehr deutlich die Durchquerung stratosphärischer Luftmassen (Abb. 7). In der Troposphäre beträgt das Ozonmischungsverhältnis nahezu konstant 50 ppbv. Die potentielle Vorticity schwankt auf der kalten Seite des Jets um 1 PVU. Der Eintritt in die Tropopausenfaltung ist durch einen starken Anstieg beider Größen gekennzeichnet. Das Ozonmischungsverhältnis erreicht um 10:50 Uhr ein Maximum von 205 ppbv während die potentielle Vorticity auf 4.8 PVU ansteigt. Das Verlassen der Faltungsregion spiegelt sich in einem Abfall der Ozonwerte auf rund 50 ppbv und der PV-Werte unter 0.5 PVU wider. Sowohl der zeitliche Verlauf als auch der Korrelationskoeffizient der beiden Zeitreihen von 0.81 bestätigen die gute Eignung beider Parameter als Indikatoren stratosphärischer Luftmassen.

Von großem Interesse ist die Analyse der Korrelation zwischen Ozon und potentieller Vorticity, die zum einen für das Verständnis der Rolle dynamischer Prozesse für die Ozonklimatologie wichtig ist und zum anderen zur Initialisierung vieler Chemie-Transport-Modelle genutzt wird (*Lippert, 1996*) und Rückschlüsse von den berechneten Luftmassenflüssen auf Ozonflüsse erlaubt.

In der Literatur schwanken die Regressionskoeffizienten zwischen 25 (*Meyer, 1997*) und 120 ppbv/PVU (*Danielsen, 1968*). Desweiteren gibt es Arbeiten bzw. Fallstudien, die eher einen parabolischen als einen linearen Zusammenhang zwischen diesen beiden Parametern aufzeigen (*Ravetta et al., 1998*). Um verlässlichere Aussagen insbesondere über eine mögliche Breiten- und Höhenabhängigkeit zu erhalten, bedarf es sicherlich einer breiteren Datenbasis.

Bei der hier analysierten Fallstudie legt das in Abbildung 8 dargestellte Streudiagramm des Ozonmischungsverhältnisses gegen die potentielle Vorticity ebenfalls nahe, statt der bisher betrachteten linearen Beziehung einen parabolischen Zusammenhang anzunehmen $\chi_{O_3} = a_0 + a_1 P + a_2 P^2$. Dabei erhält man folgende Werte: $a_0 = 44.8$ ppbv, $a_1 = -6.2$ ppbv/PVU, $a_2 = 5.1$ ppbv/(PVU)².

Diese Anpassung stellt eine neue mögliche Form für die Initialisierung des Chemie-Transport-Modells mit Hilfe der potentiellen Vorticity dar (*Kowol-Santen, 1998; Ravetta et al., 1998*).

2.1.5 Analyse des Ozonhaushaltes in der oberen Troposphäre und der unteren Stratosphäre

In der oberen Troposphäre stellen die sogenannten CO- und CH₄-Oxidationszyklen die wichtigsten chemischen Produktionszyklen von Ozon dar (z.B. *Ehhalt und Rohrer, 1994*) und sind auch in der unteren Stratosphäre von großer Bedeutung (z.B. *Brasseur und Solomon, 1986*). Dagegen ist die Oxidation höherer Kohlenwasserstoffe nach *Ehhalt und*

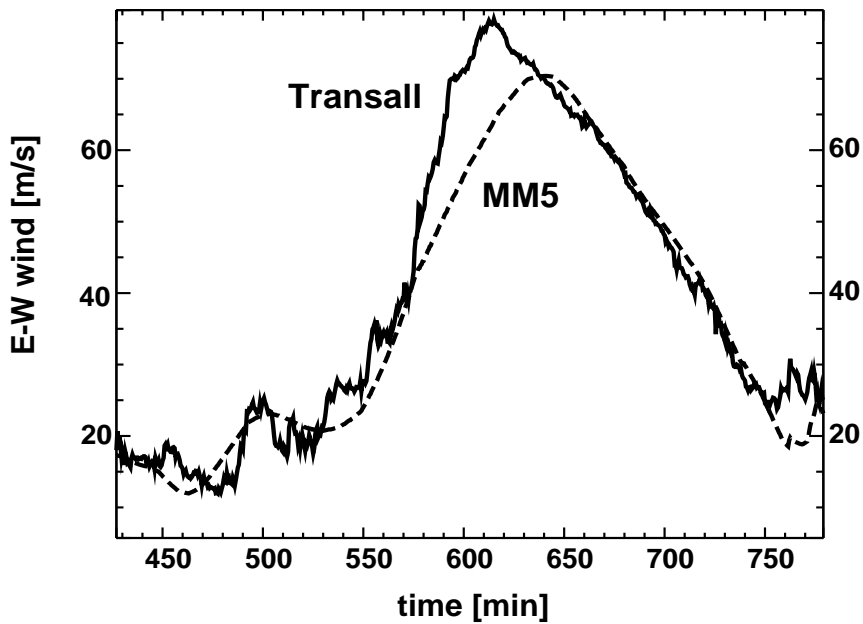


Abbildung 6: Vergleich zwischen Meßwerten (durchgezogene Linie) und Simulationsergebnissen (gestrichelte Linie) des horizontalen Windfeldes. Dargestellter Zeitraum der Messung: 7. Februar 1995 zwischen 7:00 und 12:00 UTC.

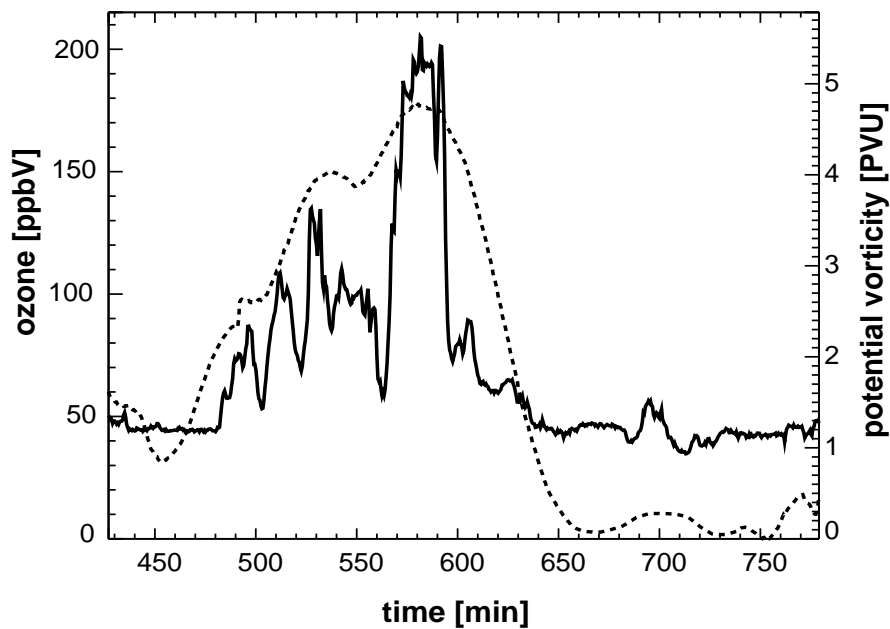


Abbildung 7: Zeitliche Entwicklung des gemessenen Ozonmischungsverhältnisses (durchgezogene Linie) und der anhand der MM5-Ergebnisse berechneten potentiellen Vorticity (punktierter Kurve) entlang der Flugroute. Dargestellter Zeitraum der Messung: 7. Februar 1995 zwischen 7:00 und 12:00 UTC.

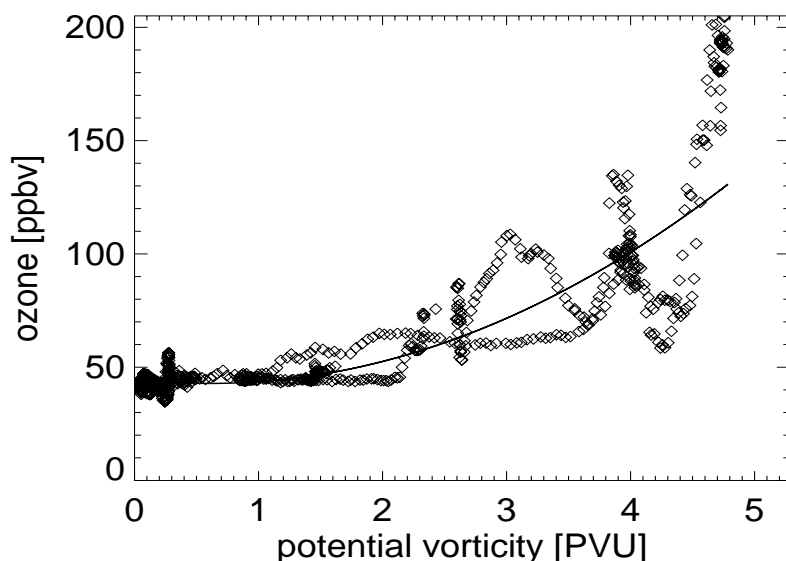


Abbildung 8: Streudiagramm des Ozonmischungsverhältnisses gegen potentielle Vorticity entlang der Flugroute zwischen 7 und 12 UTC am 7. Februar 1995 und die parabolische Anpassung (dicke schwarze Linie).

Rohrer (1994) und Brasseur und Solomon (1986) für die Ozonbildung im Tropopausenbereich von geringerer Relevanz. Die Oxidationszyklen von CO und CH₄ werden durch OH initiiert und können je nach NO_x-Gehalt auch zum Ozonabbau führen. Ehhalt und Rohrer (1994) haben gezeigt, daß die Nettoproduktionsrate von Ozon in der oberen Troposphäre in stark nichtlinearer Weise von der NO_x-Konzentration abhängt. Die Oxidation von CO und CH₄ führt netto zur Produktion von O₃, falls das Konzentrationsverhältnis $\frac{[NO]}{[O_3]} > 10^{-4}$ ist, was in der Regel bei einem NO-Gehalt von etwa 50 - 100 pptv und einem Ozonmischungsverhältnis in der Größenordnung von 100 ppbv auch in der Tropopausenregion der Fall ist.

Daneben spielen nach Garcia und Solomon (1994) oder Wennberg et al. (1994) O₃-Abbauzyklen, bei denen HO_x, BrO_x, ClO_x und NO_x als Katalysatoren in Tropopausennähe eine Rolle.

Für die Analyse der relevanten Prozesse in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre wurden mit dem Chemie-Transport-Modell des EURAD-Systems eine Reihe von Simulationen für verschiedene Episoden durchgeführt. In Abbildung 9 werden beispielhaft die Ergebnisse der Budgetanalyse eines Oktoberfalls (21.10.1993 – 25.10.1993) für drei verschiedene Höhenbereiche der Modellatmosphäre dargestellt. Zur Bilanzierung wurde die Atmosphäre in verschiedene Höhenbereiche unterteilt, die dynamisch und chemisch unterschiedliche Regimes darstellen. Hierbei erstreckt sich der erste Bereich vom Erdboden bis in eine Höhe von etwa 400 hPa (Abb. 9, unten), welcher der unteren sowie der freien Troposphäre entspricht. Die Tropopausenregion wird durch den darüberliegenden Höhenbereich bis etwa 220 hPa (mittleres Bild in Abb. 9) erfaßt, während die Ergebnisse für die untere Stratosphäre (Bereich zw. 220 hPa und 10 hPa) im oberen Bild der Abb. 9 gezeigt werden. Diese Abbildung zeigt die durch verschiedene Prozesse bedingten, über das

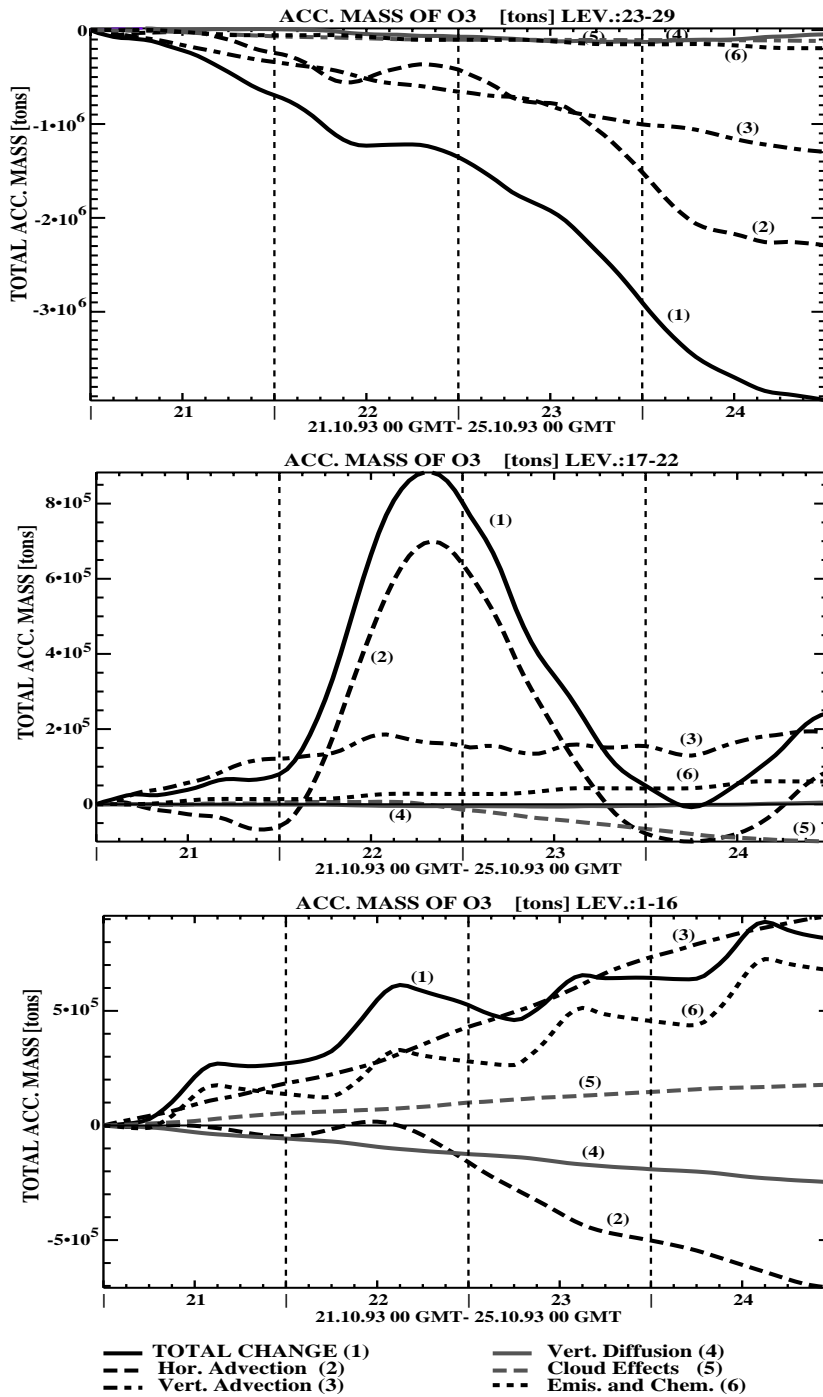


Abbildung 9: Absolute Änderung der O₃-Gesamtmasse [Tonnen] sowie die Beiträge der einzelnen Prozesse während des Zeitraums vom 21.10.1993 – 25.10.1993. Horizontales Integrationsgebiet: gesamtes CTM- Gebiet. Oben: integriert über die Modellschichten 23–29 (~ 220–10 hPa). Mitte: integriert über die Modellschichten 17–22 (~ 400–220 hPa). Unten: integriert über die Modellschichten 1–16 (~ 1000–400 hPa).;

gesamte Modellgebiet (gleiches Gebiet wie in Abb. 4, oben) sowie die über o.g. Höhenbereiche integrierten Massenänderungen von Ozon seit Beginn der Simulation. Während dieser 4 Simulationstage beträgt die mittlere Gesamtmasse von Ozon etwa 5.65×10^7 , 3.64×10^6 bzw. etwa 5.6×10^6 Tonnen in den Höhenbereichen untere Stratosphäre, Tropopausenregion bzw. untere und freie Troposphäre.

Wie aus Abbildung 9 hervorgeht, tragen vor allem die horizontale und vertikale Advektion in diesem Fall im Bereich der unteren Stratosphäre und in der Tropopausenregion erheblich zur Massenänderung bei, während chemische Prozesse hierbei eine vergleichsweise geringere Rolle spielen. Dagegen bewirken chemische Prozesse in der Tropopausenregion in den betrachteten 4 Tagen eine Ozonzunahme von etwa 6×10^4 Tonnen, was einem relativen Beitrag von etwa 1.65 % zur Änderung der O_3 - Gesamtmasse entspricht. Dagegen trägt die chemische Produktion von Ozon in der freien und unteren Troposphäre erheblich zur gesamten Massenänderung von Ozon bei (etwa 7×10^5 Tonnen bzw. 12.5 %; Bild unten). Anhand der Resultate in Abb. 9 wird deutlich, daß während der dargestellten Tage Ozon durch vertikale Advektion aus der Stratosphäre in die Troposphäre eingemischt wird. Dieser Austauschprozeß wurde bereits im letzten Zwischenbericht ausführlich diskutiert.

Entsprechende Budgetrechnungen für eine Fallstudie im Juni 1996 (21.06.96 – 26.06.96; gleiches Modellgebiet wie in Abb. 4, oben) haben gezeigt, daß im Sommer die chemischen Prozesse den Spurenstoffhaushalt (insbesondere den Ozonhaushalt) in der Tropopausenregion maßgeblich bestimmen können. Während dieser 6-tägigen Episode betragen die mittleren, über das CTM- Gebiet summierten Gesamtmassen von Ozon 6.37×10^7 , 4.55×10^6 bzw. etwa 6.65×10^6 Tonnen in den Höhenregionen untere Stratosphäre, Tropopausenregion bzw. untere und freie Troposphäre (ohne Abb.). Hierbei bewirken chemische Mechanismen in der unteren Stratosphäre einen Ozonabbau von etwa 7×10^5 Tonnen (etwa 1.1 %). Gleichzeitig führen chemische Prozesse in den beiden anderen Höhenbereichen zur Produktion von Ozon und tragen mit etwa 2×10^5 Tonnen (etwa 4.5 %) in der Tropopausenregion und etwa 3×10^6 Tonnen (etwa 45 %) in der unteren und freien Troposphäre zur Änderung der O_3 - Gesamtmasse bei (ohne Abb.).

Insgesamt haben die Budgetrechnungen für verschiedene Episoden gezeigt, daß sowohl dynamische als auch chemische Prozesse eine wichtige Rolle im Bezug auf den Ozonhaushalt der Tropopausenregion spielen können. Daher muß ein Chemie–Transport–Modell zur Simulation des Spurenstoffhaushaltes in der Tropopausenregion in der Lage sein, sowohl die chemischen Prozesse der Troposphäre als auch entsprechende der Stratosphäre detailliert zu behandeln.

2.1.6 Luftmassen– und Ozonflüsse durch die Tropopause

Zu den wichtigsten Aufgaben dieses Projektes gehörte die Simulation austauschintensiver Wetterlagen und die Quantifizierung des aufwärts und abwärts gerichteten Luftmassen– und Spurenstoffflusses während dieser Ereignisse. In der Literatur findet man in den meisten Fällen nur Arbeiten, die einzelne Fallstudien untersuchen. Die Ozon– und Luftmassenflüsse zeigen dabei eine breite Streuung. Ein Vergleich der Ergebnisse dieser Studien

wird dadurch erschwert, daß die Autoren unterschiedliche Methoden und Datensätze verwenden.

Um verlässlichere Aussagen über den Transport durch die Tropopause treffen zu können bedarf es insbesondere einer breiteren Datenbasis, die auf der Grundlage desselben Verfahrens gewonnen wurde.

Fallstudie/Zeitraum	Luftmassenflüsse [$10^{13} \text{kg}/\text{Tag}/10^6 \text{km}^2$]			Ozonflüsse [$10^{10} \text{molec}/\text{cm}^2/\text{s}$]
	aufwärts	abwärts	netto	(netto)
1. Tropopausenfaltung 10.10–21.10.93	43.6	-55.8	-12.2	-29.4
2. Kaltlufttropfen 21.10–25.10.93	26.2	-33.1	-6.9	-16.6
3. Trog / Tropopausenfaltung 23.01–04.02.95	33.1	-40.2	-7.1	-17.1
4. Tropopausenfaltung 04.02–11.02.95	27.7	-40.6	-12.9	-31.1
5. Trog / Tropopausenfaltung 01.03–06.03.95	23.7	-31.8	-8.1	-19.5
6. Trog / Kaltlufttropfen 19.06–26.06.96	7.1	-12.2	-5.1	-12.3
7. Kaltlufttropfen 14.06–22.06.96	13.8	-19.4	-5.6	-13.5
8. Trog / Streamer 01.02–14.02.97	21.2	-30.5	-9.3	-22.4

Tabelle 2: Luftmassen- und Ozonflüsse durch die 2-PVU-Fläche berechnet für unterschiedliche meteorologische Situationen.

Im Rahmen des Projektes MESSTRO wurden unterschiedliche austauschintensive Wetterlagen untersucht und die Luftmassen- und Ozonflüsse durch die Tropopause mit Hilfe der oben beschriebenen Trajektorienanalyse quantifiziert. Die Ergebnisse dieses Lagrangeschen Verfahrens wurden für ausgewählte Fallstudien mit Ergebnissen der Eulerschen Betrachtungsweise der Wei-Formel verglichen und zeigten eine gute Übereinstimmung (Kowol-Santen, 1998). Desweiteren wurden unter der Annahme eines Ozonmischungsverhältnisses von 100 ppbv an der 2-PVU-Fläche die Luftmassenflüsse in Ozonflüsse umgerechnet und den Resultaten der Budgetrechnungen gegenübergestellt. Diese Vergleiche zeigten ebenfalls eine gute Übereinstimmung (Kowol-Santen et al., 1997).

Der Trajektorienalgorithmus wurde gewählt, da er neben der Quantifizierung des stratosphärisch-troposphärischen Austausches eine sehr detaillierte Analyse der Dynamik der Tropopausenregion ermöglicht. Auf diese Weise kann z.B. die Verlagerung von Luftmassen zwischen Meßstationen analysiert werden sowie die Tendenz der potentiellen Vorticity und somit die Ursache für den irreversiblen Austausch von Luftmassen entlang der Trajektorien untersucht werden.

In Tabelle 2 sind die Ergebnisse der Flußrechnungen für unterschiedliche meteorologische Situationen zusammengefaßt. Betrachtet man die Resultate, so zeigen alle im Rahmen dieses Vorhabens sowie in Kooperation mit anderen Projekten (TOASTE-C und STRATFLUT) analysierten Fallstudien einen Netto-Abwärtstransport stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre.

Der Vergleich der einzelnen Fallstudien zeigt, daß die reinen Abwärtsflüsse am stärksten im Fall der Tropopausenfaltung im Oktober 1993 (Fallstudie 1) ausgeprägt waren. Es handelte sich dabei um eine besonders tief in die Troposphäre (bis rund 750 hPa) hinabreichende Faltung. Die geringsten abwärts gerichteten Flüsse traten im Fall der beiden Kaltlufttropfen im Juni 1996 (Fallstudien 6 und 7) auf.

Ein ähnliches Bild zeichnet sich bei den reinen Aufwärtsflüssen ab mit einem Maximum im Fall der Tropopausenfaltung im Oktober 1993 und minimalen Werten für die beiden Kaltlufttropfen im Juni 1996.

Der im Vergleich zu den anderen Fallstudien größte Fluß stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre von rund 13×10^{13} kg/Tag/ 10^6 km² wurde für die im Februar 1995 über Skandinavien beobachtete Tropopausenfaltung (vgl. Abschnitt 2.1.4) berechnet. Den geringsten Eintrag stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre weist mit rund 5×10^{13} kg/Tag/ 10^6 km² der Kaltlufttropfen über Nord- und Mitteleuropa im Juni 1996 auf.

3.3 Zusammenfassung

In dem Vorhaben MESSTRO wurden die Dynamik, der Transport und die Chemie in der unteren Stratosphäre und oberen Troposphäre mit Hilfe des dreidimensionalen mesoskaligen EURAD- Modellsystems untersucht. Dazu wurde das Modellsystem den jeweiligen Anforderungen zur Simulation der Vorgänge im Tropopausenbereich angepaßt. Da die Initialisierung der Konzentrationsfelder atmosphärisch relevanter Spurenstoffe in einem mesoskaligen, flächenbegrenzten Chemie-Transport-Modell wie dem CTM des EURAD-Modellsystems von großer Bedeutung ist, wurde das Initialisierungsverfahren des CTM für seine Anwendung im Tropopausenbereich modifiziert. Durch die Kopplung der Konzentrationsfelder chemisch relevanter Spezies an die potentielle Vorticity wurde die Verwendung statischer Rand- und Anfangsbedingungen der Konzentrationsverteilungen zugunsten von an die jeweilige dynamische Situation angepaßten Bedingungen verworfen. Damit werden dynamische Prozesse, die außerhalb des Modellgebietes – also auf der globalen Skala – stattfinden und sich auf die Konzentrationsverteilung relevanter Spurenstoffe auswirken, bei der Initialisierung und der Advektion von Luftmassen ins Modellgebiet hinein in den simulierten Hintergrundfeldern berücksichtigt. Auf diese Weise wird der Wechselwirkung zwischen der globalen und der Meso- Skala Rechnung getragen.

Im Rahmen dieses Vorhabens wurden in Zusammenarbeit mit Experimentatoren Validierungen des EURAD- Modellsystems vor allem im Hinblick auf die Eignung zur Simulation der Dynamik der Tropopausenregion durchgeführt. Der Vergleich der Modellergebnisse mit Messungen zeigte eine gute Übereinstimmung. Es konnte gezeigt werden, daß weder eine zeitliche noch eine signifikante räumliche Verschiebung zwischen gemessenen und den vom meteorologischen Modell MM5 prognostizierten Größen vorliegt.

Die Analyse der Korrelation zwischen Ozon und potentieller Vorticity ist insbesondere im Hinblick auf die Initialisierung von Chemie-Transport-Modellen von großem Interesse. Hier schwanken die Regressionskoeffizienten in der Literatur sehr stark. Die im Rahmen dieses Vorhabens durchgeführte Korrelationsanalyse zwischen gemessenem Ozon und prognostizierter potentieller Vorticity legte nahe, anstatt der bisher betrachteten linearen Beziehung einen parabolischen Zusammenhang anzunehmen. Sicherlich bedarf es hier einer breiteren Datenbasis, um belastbare Aussagen über die Gültigkeit dieser Annahme treffen zu können.

Die Mechanismen, welche den stratosphärisch-troposphärischen Austausch weitgehend bestimmen, werden ebenso wie die quantitativen Abschätzungen der Flüsse durch die Tropopause bis heute kontrovers diskutiert. Das Verständnis dieser Prozesse ist von entscheidender Bedeutung für die Beurteilung des atmosphärischen Spurenstoffhaushaltes. Bei den für die mittleren Breiten bedeutendsten Austauschvorgängen zwischen der Stratosphäre und der Troposphäre handelt es sich im wesentlichen um mesoskalige Ereignisse wie Tropopausenfaltungen (*Danielsen, 1968; Ebel et al., 1996; Elbern et al., 1997; Elbern et al., 1998, Kowol-Santen, 1998*), Kaltlufttropfen (*Hendricks, 1993; Price und Vaughan, 1993*) und Streamer (*Appenzeller und Davies, 1992; Appenzeller et al., 1996*). Für die numerische Erfassung dieser dynamischen Ereignisse ist ein mesoskaliges Modell wie das EURAD- Modellsystem besonders geeignet, da seine hohe räumliche und zeitliche Auflösung es ermöglicht, die meisten der für den stratosphärisch-troposphärischen Austausch relevanten Prozesse zu erfassen und die Luftmassen- und Ozonflüsse quantitativ zu bestimmen. Desweiteren können auch die chemischen Prozesse, die den Spurenstoffhaushalt und insbesondere das Ozonbudget beeinflussen, auf der Mesoskala besonders detailliert behandelt werden.

Für die Analyse der Transport- und Austauschprozesse in der Tropopausenregion wurde das EURAD- Modellsystem um zwei Eulersche Verfahren (Wei-Formel und Budgetanalysen) sowie um zwei Lagrangesche Verfahren (Trajektorienanalyse und Konturadvektion) erweitert.

Bei der Berechnung von Flüssen durch eine wohldefinierte Fläche wie die Tropopause werden durch die Wei-Formel diabatische Prozesse, die lokale vertikale Änderung der Lage der Tropopause sowie der Transport entlang von isentropen Flächen berücksichtigt.

Mit Hilfe der Budgetanalysen können die einzelnen Beiträge der verschiedenen dynamischen und chemischen Prozesse zur Änderung des Spurenstoffhaushaltes in der Atmosphäre und insbesondere auch im Tropopausenbereich bilanziert werden und der vertikale Transport von Spurenstoffen quantitativ bestimmt werden.

Im Rahmen des Vorhabens wurde ein neuer Trajektorienalgorithmus entwickelt, der eine

sehr detaillierte Analyse von Transportprozessen und die Quantifizierung des Luftmasenaustauschs ermöglicht. Der Algorithmus beinhaltet eine Tendenzanalyse der potentiellen Vorticity, die es ermöglicht, die Prozesse, welche maßgeblich den stratosphärisch-troposphärischen Austausch bestimmen, zu analysieren.

Als zweite Lagrangesche Methode wurde das Verfahren der Konturadvektion im Rahmen der numerischen Analyse von Transport- und Austauschprozessen im Tropopausenbereich als Postprozessor in das EURAD- Modellsystem implementiert. Einen entscheidenden Vorteil der mesoskaligen Konturadvektion stellt bei der hier behandelten Dynamik der Tropopausenregion die Erhöhung der Genauigkeit dieses Verfahrens bei gleichzeitiger Reduktion der Interpolationsanforderungen dar. Die Konturadvektionsmethode ermöglicht, die in der Tropopausenregion häufig anzutreffenden komplexen Strömungsmuster mit feinskaligen, subsynoptischen Strukturen numerisch detailliert zu erfassen. Solche Strukturen werden in der Natur häufig beobachtet und können die PV-Verteilung entscheidend beeinflussen (*Keyser und Rotunno, 1990*). Der Vergleich zwischen Eulerschen und Lagrangeschen Methoden hat gezeigt, daß es eines hochauflösenden Verfahrens wie der Konturadvektion bedarf, um diese Strukturen numerisch zu erfassen.

Die Simulationen mit dem Chemie-Transport-Modell des EURAD- Systems und insbesondere die Budgetanalysen haben gezeigt, daß bei den gerechneten Episoden in der kalten Jahreszeit dynamische Prozesse (horizontale und vertikale Advektion) den größten Beitrag zum Ozonhaushalt in der Tropopausenregion auf der Mesoskala während der jeweilig betrachteten Zeiträume von einigen Tagen leisten. Dieses Bild änderte sich während einer austauschintensiven Episode im Juni 1996. Die Modellergebnisse zeigten, daß hier neben der vertikalen Advektion starke Konvektion sowie chemische Prozesse maßgeblich den Spurenstoffhaushalt in der Tropopausenregion bestimmen. Die Modellresultate für die verschiedenen Episoden haben insbesondere gezeigt, daß in Abhängigkeit von der jeweiligen meteorologischen Situation unterschiedliche Prozesse bedeutend zum Spurenstoffhaushalt der Tropopausenregion beitragen können.

Das Hauptziel dieses Projektes war die quantitative Abschätzung des Spurenstoffflusses durch die Tropopause. Hierzu findet man in der Literatur zwar eine Reihe von sowohl mesoskaligen als auch globalen Abschätzungen, die Werte sind jedoch breit gestreut. Zum einen liegt dies an der Variabilität der untersuchten meteorologischen Situationen. Zum anderen wurden oft unterschiedliche Verfahren verwendet, denen unterschiedliche Meß- bzw. Modelldaten zugrunde lagen. Im Rahmen dieses Vorhabens wurden sowohl unterschiedliche Verfahren einander gegenübergestellt als auch unterschiedliche dynamische Situationen analysiert. Hierzu wurden eine Reihe von Fallstudien, in denen Austauschereignisse stattgefunden haben, mit dem EURAD- Modellsystem simuliert, um auf einer breiten Basis von untersuchten Episoden und unter Verwendung von einheitlichen Methoden und Datensätzen verlässlichere Aussagen über den Transport durch die Tropopause zu erhalten. Die mit den verschiedenen Verfahren berechneten Luftmassenflüsse durch die Tropopause stimmten im Vergleich zueinander gut überein. Insbesondere die gute Übereinstimmung der mit den unterschiedlichen Verfahren berechneten Netto- Flüsse kann als Bestätigung der Zuverlässigkeit dieser Methoden auf der Mesoskala betrachtet werden.

Der Vergleich der Fallstudien untereinander hat gezeigt, daß die stärksten Abwärtsflüsse mit $12 \times 10^{13} \text{ kg/Tag}/10^6 \text{ km}^2$ während der Episode im Oktober 1993 sowie der Episode

im Februar 1995 in der jeweiligen Region der Tropopausenfaltung aufgetreten sind (s. Tab. 2). Der geringste abwärts gerichtete Fluß stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre wurde mit $5.1 \times 10^{13} \text{ kg/Tag}/10^6 \text{ km}^2$ für den im Juni 1996 über Nord- und Mitteleuropa aufgetretenen Kaltlufttropfen bestimmt. Unter der Annahme eines Ozonmischungsverhältnisses von 100 ppbv an der 2 PVU- Fläche wurden die Ozonflüsse durch die Tropopause berechnet. Der Vergleich dieser Zahlen mit dem anhand der Budgetanalysen berechneten Transport von Ozon zeigte ebenfalls eine gute Übereinstimmung der Abwärtsflüsse von O_3 (s. Tab. 2) (*Kowol-Santen, 1998*).

Vergleicht man diese Ergebnisse mit den Literaturwerten, so zeigt sich, daß die hier bestimmten Luftmassen- und Ozonflüsse im unteren Bereich der Literaturwerte liegen. Hierbei sollte allerdings darauf hingewiesen werden, daß einige dieser Literaturstudien unter der Annahme, daß im Bereich der Intrusion kein aufwärtsgerichteter Transport stattfindet, nur den abwärtsgerichteten Fluß quantifiziert haben. Wie jedoch aus den Ergebnissen dieses Vorhabens deutlich wird, darf der Aufwärtstransport nicht vernachlässigt werden.

3.4 Literatur

- Anthes, R.A., E.Y. Hsie, Y.H. Kuo: Description of the Penn State/NCAR Mesoscale Model Version 4 (MM4). NCAR Technical Note, NCAR/TN-282+STR, 1987.
- Appenzeller, C., H. C. Davies: Structure of Stratospheric Intrusions into the Troposphere. *Nature*, 358, 570-572, 1992.
- Appenzeller, C., H. C. Davies, W. A. Norton: Fragmentation of Stratospheric Intrusions. *J. Geophys. Res.*, 101, 1435-1456, 1996.
- Blackadar, A. K.: High Resolution Models of the Planetary Boundary Layer. In: *Advances in Environmental Science and Engineering* (edited by Pfafflin J. and Ziegler E.), 1, 3-49, Gordon and Breach, 1979.
- Brasseur, G.P., S. Solomon: *Aeronomy of the Middle Atmosphere*. D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Holland, 1986.
- Danielsen, E. F.: Stratospheric-Tropospheric Exchange based on Radioactivity and Potential Vorticity. *J. Atmos. Sci.*, 25, 502-518, 1968.
- Danielsen E. F., R.S. Hipskind, S. T. Gaines, G. W. Sachse, G. L. Gregory, G. F. Hill: Three-dimensional Analysis of Potential Vorticity associated with Tropopause Folds and observed Variations of Ozone and Carbon Monoxide. *J. Geophys. Res.*, 92, 2103-2111, 1987.
- Dritschel, D. G.: Contour Surgery: A Topological Reconnection Scheme for extended Integrations using Contour Dynamics. *Journal of Computational Physics*, 77, 1988.
- Dudhia, J.: A Nonhydrostatic Version of the Penn State-NCAR Mesoscale Model: Validation Tests and Simulation of an Atlantic Cyclone and Cold Front. *Mon. Weather Rev.*, 121, 1493-1513, 1993.
- Ebel, A., H. Hass, H.J. Jakobs, M. Memmesheimer, M. Laube, A. Oberreuter: Simulation of the Ozone Intrusion caused by a Tropopause Fold and Cut-off Low. *Atmos. Environment*, 25A, 2131-2144, 1991.
- Ebel, A., H. Elbern, J. Hendricks, R. Meyer: Stratosphere-Troposphere Exchange and its Impact on the Structure of the Lower Stratosphere. *J. Geomagn. Geoelectr.*, 48, 135-144, 1996.
- Ehhalt, D.H., F. Rohrer: The Impact of Commercial Aircraft on Tropospheric Ozone, *Proc. of the 7th BOC Priestly Conference*, 1994.
- Elbern, H., J. Kowol, R. Sládkovic and A. Ebel: Deep Stratospheric Intrusions: A Statistical Assessment with Model guided Analyses. *Atmos. Environment*, 31, 3207-3226, 1997.
- Elbern, H., J. Hendricks, A. Ebel: A Climatology of Tropopause Folds by Global Analyses. *Theor. a. Appl. Climat.*, 59, 181-200, 1998.
- EURAD: *Das EURAD-Modell: Aufbau und erste Ergebnisse*. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Köln, 1989.
- Garcia, R.R., S. Solomon: A New Numerical Model of the Middle Atmosphere 2. Ozone

- and related Species. *J. Geophys. Res.*, 99, 12937–12951, 1994.
- Hass, H.: Description of the EURAD Chemistry-Transport-Model Version 2 (CTM2). *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 83, 100pp., 1991.
- Hendricks, J.: Die Bestimmung der Häufigkeit von Tropopausenfaltungen mittels objektiver Identifikationsverfahren. Diplomarbeit am Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, 96 pp., 1993.
- Keyser, D., R. Rotunno: On the Formation of Potential Vorticity Anomalies in Upper-level Jet-front Systems. *Mon. Weather Rev.*, 118, 1914–1921, 1990.
- Klasen, D.: Stratosphärisch-troposphärischer Austausch im Bereich eines Kaltlufttropfens – Analyse von Meß- und Modelldaten. Diplomarbeit am Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, 102 pp., 1998.
- Kowol-Santen, J.: Numerische Analysen von Transport- und Austauschprozessen in der Tropopausenregion der mittleren Breiten. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 123, 186 pp., 1998.
- Kuo, H. L.: Further Studies of the Parameterization of the Influence of Cumulus Convection on Large-scale Flow. *J. Atmos. Sci.*, 31, 1232–1240, 1974.
- Lippert, E.: Der Einfluß von Flugzeugabgasen auf die Zusammensetzung der Atmosphäre: Untersuchungen mit einem mesoskaligen Chemie-Transport-Modell. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 109, 222 pp., 1996.
- Louis, J.F.: A Parametric Model of Vertical Eddy Fluxes in the Atmosphere. *Bound.-Layer Meteor.*, 17, 187–202, 1979.
- Kowol-Santen, J.: Numerische Analysen von Transport- und Austauschprozessen in der Tropopausenregion der mittleren Breiten. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 123, 186 pp., 1998.
- Meyer, R.: Quantitative Analysen der Luftmassenflüsse durch die Tropopause in mittleren Breiten: Untersuchungen mit einem mesoskaligen meteorologischen Modell. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 121, 161 pp., 1997.
- Oberreuter, H. Geiß und Y.-H. Kuo: Simulation of Ozone Intrusion caused by a Tropopause Fold and Cut-off Low. *Atmos. Environment*, 25, 2131-2145, 1991.
- Petry, H.: Zur Wahl der Anfangskonzentrationen für die numerische Modellierung regionaler troposphärischer Schadstofffelder. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 89, 320 pp., 1993.
- Price, J. D., G. Vaughan: On the Potential for Stratosphere-Troposphere Exchange in Cut-off Low Systems. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 119, 343–365, 1993.
- Ravetta, F., G. Ancellet, J. Kowol-Santen, R. Wilson, D. Nedeljkovic: Ozone, Temperature and Wind Field Measurements in a Tropopause Fold: Comparison with a Mesoscale Model Simulation. Accepted by *Mon. Weather Rev.*, 1998.
- Smolarkiewicz, P.K.: A Simple Positive Definite Advection Scheme with Small Implicit

Diffusion. Mon. Weather Rev., 111, 479–486, 1983.

Walcek, C.J., G.R. Taylor: A Theoretical Method for Computing Vertical Distributions of Acidity and Sulfate Production within Cumulus Clouds. *J. Atmos. Sci.*, 43, 339–355, 1986.

Wei, M. Y.: A new Formulation of the Exchange of Mass and Trace Constituents between the Stratosphere and Troposphere. *J. Atmos. Sci.*, 44, 3079–3086, 1987.

Wennberg P.O., R.C. Cohen, R.M. Stimpfle, J.P. Koplow, J.G. Anderson, R.J. Salawitch, D.W. Fahey, E.L. Woodbridge, E.R. Keim, R.S. Gao, C.R. Webster, R.D. May, D.W. Toohey, L.M. Avallone, M.H. Proffit, M. Loewenstein, J.R. Podolske, K.R. Chan, S.C. Wofsy: Removal of Stratospheric O₃ by Radicals: In Situ Measurements of OH, HO₂, NO, NO₂, ClO, and BrO. *Science*, 266, 398–404, 1994.

3.5 Dissertationen und Diplomarbeiten:

Meyer, R.: Quantitative Analysen der Luftmassenflüsse durch die Tropopause in mittleren Breiten: Untersuchungen mit einem mesoskaligen meteorologischen Modell. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 121, 161 pp., 1997.

Klasen, D.: Stratosphärisch–troposphärischer Austausch im Bereich eines Kaltlufttropfens – Analyse von Meß– und Modelldaten. *Diplomarbeit am Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, 102 pp., 1998.

Kowol–Santen, J.: Numerische Analysen von Transport- und Austauschprozessen in der Tropopausenregion der mittleren Breiten. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 123, 186 pp., 1998.

3.6 Abhandlungen in Sammelwerken:

Ebel, A., R. Meyer, J. Kowol–Santen and S. Tilmes: Assessment of cross tropopause air mass flux estimates based on mesoscale numerical simulations. *Proceedings of the 1st SPARC General Assembly, Melbourne, 1996*.

Kowol, J., R. Meyer, H. Petry, H. Elbern, A. Ebel: Trajectory analysis of air mass transport in a tropopause fold. In: *Air pollution research report 56: Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee*. J.A. Pyle, N.R.P. Harris, G.T. Amanatidis (Eds.), 52–55, European Commission, Luxembourg, 1996.

Kowol–Santen, J., R. Meyer, H. Petry, H. Elbern and A. Ebel: Simulation and Verification of Air Mass Transport in Tropopause Folds and Cut–off Lows. *Ann. Geophys.*, Supplement II to Vol. 14, General Assembly, Den Haag, 1996.

Kowol–Santen, J., E. Lippert, R. Meyer and A. Ebel: Estimation of Crosstropopause Air Mass and Ozone Fluxes using different Methods. *Air Pollution Research Report, Polar Stratospheric Ozone, Proceedings of the Fourth European Workshop, Schliersee, September 1997*.

3.7 Referierte Veröffentlichungen:

Ebel, A., H. Elbern, J. Hendricks, R. Meyer: Stratosphere–Troposphere Exchange and its Impact on the Structure of the Lower Stratosphere. *J. Geomagn. Geoelectr.*, 48, 135–144, 1996.

Elbern, H., J. Kowol, R. Sládkovic, A. Ebel: Deep Stratospheric Intrusions: A Statistical Assessment with Model guided Analyses. *Atmos. Environment*, 31, 3207–3226, 1997.

Beekmann, M., G. Ancellet, S. Blonsky, D. de Muer, A. Ebel, H. Elbern, J. Hendricks, J. Kowol, C. Mancier, R. Sladkovic, H. G. J. Smit, P. Speth, T. Trickl, Ph. van Haver: Regional and Global Tropopause Fold Occurrence and Related Ozone Flux across the Tropopause. *J. Atmos. Chem.*, **28**, 29 – 44, 1997.

Elbern, H., J. Hendricks, A. Ebel: A Climatology of Tropopause Folds by Global Analyses. *Theor. Appl. Climat.*, 59, 181–200, 1998.

Ravetta, F., G. Ancellet, J. Kowol–Santen, R. Wilson, D. Nedeljkovic: Ozone, Temperature and Wind Field Measurements in a Tropopause Fold: Comparison with a Mesoscale Model Simulation. *Mon. Weather Rev.*, 1999, im Druck.