

Förderschwerpunkt: Atmosphärische Aerosolforschung (AFS)

Förderkennzeichen: **07AF214/9**
Arbeitsgruppe III, Modellierung

Vorhaben:

**Auswirkungen der aktivierbaren Aerosolfraktion auf die
Tropfengrößenverteilung und den Eisbildungsprozeß durch
Tropfengefrieren: Eine detaillierte numerische Untersuchung und
Ableitung eines Parametrisierungsansatzes**

Durchführung:

**Universität Bonn,
Meteorologisches Institut,
Auf dem Hügel 20, 53121 Bonn
Prof. Dr. Andreas Bott¹, Dr. Sabine Wurzler² und Tanja
Winterrath³**

¹ Meteorologisches Institut, Universität Bonn, Auf dem Hügel 20, 53121 Bonn,
Tel:0228 735189, Fax:0228 735188, Email: a.bott@uni-bonn.de

² Institut für Troposphärenforschung, Permoserstr. 15, 04318 Leipzig,
Tel:0341 2352146, Fax:0341 2352139, Email: wurzler@tropos.de

³ Institut für Physik der Atmosphäre, Johannes Gutenberg-Universität, Becherweg 21, 55128
Mainz,
Tel:06131 3925116, Fax:06131 3923532, Email: winterra@uni-mainz.de

**Abschlußbericht
Berichtszeitraum:
1.1.1998 bis 31.12.2001**

Projektkurzbeschreibung

Im Rahmen des Projektes wurden anhand eines Wolkenmodells (Luftpaketmodell) mit detaillierter Mikrophysik (Aerosolpartikel–Tropfen–Eisteilchen) der Einfluß typischer Vertikalprofile, chemischer Kompositionen und wasserlöslicher Anteile der Aerosolpartikel auf die resultierende Tropfengrößenverteilung und die Eisbildung durch Tropfengefrieren untersucht. Die physikalischen und chemischen Eigenschaften der Aerosolpartikel wurden bislang selbst in Wolkenmodellen mit detaillierter Mikrophysik nur unzureichend berücksichtigt. Ein weiteres Ziel des Projektes war die Entwicklung von Parametrisierungsansätzen für die Tropfenpopulation, den Niederschlag, interstitielle Aerosolpartikel und den effektiven Tropfenradius als Funktion der Aerosolpartikelanzahl, der chemischen Komposition, des wasserlöslichen und wasserunlöslichen Anteils sowie der meteorologischen Parameter. Durch die Berücksichtigung der Aerosolpartikel in den Parametrisierungsansätzen wurde eine Verbesserung der Prognosequalität parametrisierter Modelle angestrebt. Die Projektziele wurden in den folgenden Projektphasen bearbeitet:

1. Auswirkungen der aktivierbaren Aerosolfraktion auf die Tropfengrößenverteilung

Neben dem Einfluß der Anzahl und der Größe der Aerosolpartikel wurden besonders die Auswirkungen der chemischen Komposition der Aerosolpartikel auf die Wolkenmikrophysik anhand von Modellstudien mit einem Luftpaketmodell betrachtet. Das Wolkenmodell wurde weiterentwickelt und angewandt auf die Fragestellungen:

- Einfluß des wasserlöslichen Anteils der Aerosolpartikel auf die resultierende Tropfenpopulation
- Einfluß biologischer und benetzbarer wasserunlöslicher Aerosolpartikel auf die resultierende Tropfenpopulation

Es wurden typische maritime, rurale und kontinentale Situationen untersucht. Das Resultat dieser Studien ist eine Datenbasis über die Auswirkung der chemischen Komposition der Aerosolpartikel auf die Wolkenmikrophysik.

2. Auswirkungen der aktivierbaren Aerosolfraktion auf den Eisbildungsprozeß durch Tropfengefrieren

Das Gefrierverhalten von Tropfenpopulationen wurde unter den folgenden Aspekten untersucht:

- Auswirkungen der wasserlöslichen und wasserunlöslichen Bestandteile sowie der chemischen Komposition der Aerosolpartikel auf die resultierende Tropfengrößenverteilungen und die Auswirkungen der Varianz der Tropfengrößen auf das Gefrieren der Tropfen
- Die Gefrierpunktserniedrigung der Tropfen bedingt durch die von den Aerosolpartikeln verursachte Kontamination

Der Aggregatzustand der Wolkenteilchen in Abhängigkeit ihrer Größe und ihres Kontaminationsgrades und die daraus resultierenden Effekte wurden in das Wolkenmodell mit detaillierter Mikrophysik eingebaut und bestimmt. Das Resultat dieser Studien ist eine Datenbasis über die Auswirkungen der chemischen Komposition der Aerosolpartikel auf das Tropfengefrieren.

3. Ableitung eines Parametrisierungsansatzes aus den Ergebnissen der Projektphasen 1 und 2

Es wurde ein neuer parametrisierter Ansatz für die Prognose des heterogenen Tropfengefrierens entwickelt, der sowohl in detaillierten Wolkenmodellen als auch in großräumigen Modellen (Wettervorhersage, Klimamodelle) eine signifikante Verbesserung der Prognose der Menge, Art und des Aggregatzustands von Wolken- und Niederschlagspartikeln bewirkt.

Für die Tropfenbildung wurde kein Parametrisierungsansatz gefunden. Das Modell ermöglicht jedoch die Erstellung von look-up-tables für die Verwendung in großräumigen Modellen.

Arbeits- und Ergebnisbericht

Im Rahmen der ersten Projektphase (Auswirkungen der aktivierbaren Aerosolfraktion auf die Tropfengrößenverteilung) wurde der Einfluß der chemischen Komposition und deren Verteilung als Funktion der Partikelgröße auf die Tropfenbildung anhand eines Luftpaketmodells mit detaillierter Mikrophysik untersucht.

Es wurden typische kontinentale, remote kontinentale, rurale und maritime Szenarien sowohl bezüglich der Aerosolanzahlen und -größenverteilungen als auch bezüglich der Temperatur- und Feuchteprofile ausgewählt (z.B. Beobachtungsdaten aus den Feldexperimenten CLEOPATRA, FELDEX, NORDEX und NOSE). Sensitivitätsstudien über den Einfluß des mittleren wasserlöslichen Anteils des Aerosols auf die Tropfenbildung für die oben beschriebenen Szenarien wurden durchgeführt. Die Resultate lassen auf eine höhere Sensitivität kontinentaler Wolken bezüglich der wasserlöslichen Anteile des Aerosols im Vergleich zu maritimen Wolken schließen.

Als nächster Schritt wurde das Wolkenmodell auf die Behandlung von aerosolradienabhängiger wasserlöslicher Anteile erweitert. Des weiteren wurde die Auswirkung einer vom Partikelradius abhängigen Verteilung des wasserlöslichen Anteils der Aerosole auf die Tropfenpopulation untersucht.

Danach wurden die Effekte der Koexistenz wasserlöslicher und wasserunlöslicher Partikel auf die Mikrophysik betrachtet. Hierbei wurde zudem zwischen wasserunlöslichen benetzbaren und wasserunlöslichen unbenetzbaren Partikeln unterschieden. Unter anderem wurden die Auswirkungen von Mineralstaubpartikeln und biologischen Partikeln auf die Wolkenmikrophysik untersucht. Sowohl die partikelradienabhängige Verteilung des wasserlöslichen und wasserunlöslichen Anteils der Aerosole als auch das Quellverhalten von biologischen Partikeln in Form von Pollen beeinflussen die CCN (cloud condensation nuclei) Anzahl sowie die zeitliche Entwicklung der Wolkentropfen- und Regentropfen-Anzahl.

Resultate der ersten Projektphase (Auswirkungen biologischer Partikel und der wasserlöslichen Aerosolfraktion auf die Wolkenmikrophysik; Auswirkungen von Mineralstaubpartikeln und der Aerosolradienabhängigkeit der chemischen Komposition (u.a. löslich, unlöslich) der Aerosole auf die Wolkenmikrophysik) wurden auf der 5th International Aerosol Conference 1998 in Edinburgh (Wurzler et al., 1998a), auf dem First Israel German Bi-National Aerosol Workshop in Shefayim (Wurzler et al., 1998b), auf der AMS Conference on Cloud Physics (Levin et al., 1998) in Seattle, auf dem 2nd Genter Symposium on Geoscience: Research

Workshop on the Interactions between Chemistry, Physics and Dynamics in the Troposphere (Wurzler et al., 1999a) und bei der 6th International Aerosol Conference 1999 in Prag (Wurzler et al., 1999b, Reisin et al., 1999) vorgestellt und publiziert.

In Abbildung 1 ist ein Beispiel zur Auswirkung der wasserlöslichen Fraktion der Partikel auf die Wolkenmikrophysik dargestellt. Man sieht, daß sich die bei aerosolpartikelradienabhängigem wasserlöslichem Anteil resultierende Tropfengrößenverteilung ähnlich verhält wie im Fall komplett wasserunlöslicher Partikel. Zudem bleiben die Tropfen kleiner als im Vergleichsfall, wo angenommen wurde, daß alle Partikel komplett wasserlöslich seien. Anhand der Verteilung der wasserlöslichen Partikelfraktion innerhalb der Tropfen sieht man zudem daß nicht nur die chemische Zusammensetzung der Partikel, bzw. deren wasserlöslicher Anteil, eine wichtige Rolle spielt, sondern auch maßgeblich die Partikelgröße.

Eine Studie über die partikelradiusabhängige Verteilung des wasserlöslichen Anteils des Aerosols und die Auswirkungen von Mineralstaubteilchen auf die Wolkenmikrophysik wurde im Journal of Geophysical Research publiziert (Wurzler et al., 2000c). Hierzu wurden Modellsimulationen mit einem Parcelmodel (Flossmann et al., 1985) durchgeführt. Aufgrund der adiabatischen Abkühlung des Luftpakets beim Aufsteigen, kommt es zur Wolkenbildung. Zusätzlich wird das Einmischen von Umgebungsluft in das betrachtete Luftpaket berücksichtigt. Das Modell wurde mit einer Anfangsaerosolverteilung gestartet und durchlief drei Wolkenzyklen. Zu Beginn des zweiten und dritten Zyklus lag somit ein prozessiertes Aerosol vor. Physikalische Prozesse, die das Aerosol beeinflussen, umfassen die Aufnahme von Gasen in die Flüssigphase, Kollision und Koagulation, Break-up, sowie Mischprozesse. Die Untersuchungen beinhalten zudem den Einfluß löslicher Spurengase in der Atmosphäre. Durch die in den Tropfen gelösten Aerosolpartikel können die Mineralstaubpartikel bei der Tropfenverdunstung eine lösliche Schicht an der Oberfläche erhalten. Die Aufnahme von Schwefeldioxid in die Flüssigphase und anschließende Oxidation führt zu einer zusätzlichen Ummantelung der Mineralstaubteilchen mit einer Sulfatschicht.

Die Studien führten zu folgenden Ergebnissen:

- Die Ursache für die Bildung einer Sulfatummantelung auf Mineralstaubteilchen ist die Aufnahme von Mineralstaubteilchen (impaction scavenging) in Wolkentropfen, die auf löslichen Partikeln entstanden.
- Mit der Anzahl der Wolkenzyklen steigt die Anzahl der großen Partikel.
- Die Mikrophysik und damit die Aerosolgrößenverteilung ist relativ unabhängig von der Azidität der CCN.
- Die Aufnahme von SO_2 , H_2O_2 und O_3 und Oxidation in der Flüssigphase tragen weit weniger zur Gesamtmasse des prozessierten Aerosols bei als die Koagulation mit Tropfen, die lösliches Sulfat aus dem Aerosol enthalten.
- Die Aufnahme von Gasen in die Flüssigphase trägt hauptsächlich im Größenbereich von $10^{-2} \mu\text{m}$ bis $10^{-1} \mu\text{m}$ zur Masse des prozessierten Aerosols bei.
- Die Modelstudien zeigen, daß wolkenprozessierte Mineralstaubpartikel die Bildung von großen und damit regenfähigen Tropfen verstärken.
- Der pH-Wert der Tropfen hängt von der Azidität des Ausgangsaerosol und der Aufnahme von Gasen aus der Atmosphäre ab.

Simulationen mit einem Wolkenmodell, das die Wolkenmikrophysik als Zwei-Komponenten-System behandelt lieferten vergleichbare Ergebnisse und unterstützen die oben genannten Ergebnisse. Simulationen mit diesem Modell für die Wolkenprozessierung von löslichen Partikeln und von Mineralstaubpartikeln wurden im Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society publiziert (Kerkweg et al., 2002) und 2002 auf der EGS in Nizza vorgestellt (Bott et al., 2002). Die Unterschiede in der Darstellung der Wolkenmikrophysik mit der Zwei-Komponenten-Darstellung der Wolkenmikrophysik im Vergleich zur traditionellen detaillierten Darstellung der Wolkenmikrophysik sind in Abbildung 2 schematisch dargestellt.

Zusätzlich wurde ein weiterer Beitrag zu Projektphase 1 geleistet. In enger Zusammenarbeit mit Y. Rudich, Weizmann Institut, Rehovot, Israel, und D. Rosenfeld, The Hebrew University of Jerusalem, Israel, wurden die Auswirkungen eines Sandsturms auf die Wolkenmikrophysik von Wolken im Zentrum des Sturms sowie am Rande des Sandsturms und in der bereits galteten Staubwolke untersucht. Diese Untersuchungen wurden anhand einer Kombination von Daten aus Feldexperimenten und Satellitenbeobachtungen sowie durch Modellsimulationen durchgeführt. Die Modellsimulationen zeigen, daß die Niederschlagsbildung in warmen Wolken, die sich in einem Sandsturm bilden, stark unterdrückt wird. Es bilden sich sehr viele, aber auch sehr kleine Tropfen, die als Niederschlag nicht den Boden erreichen können. Der Mineralstaub wird von diesen Wolken nur prozessiert aber nicht ausgewaschen. Des weiteren zeigten die Modellresultate, daß Wolken am Rand des Sandsturmereignisses Nieselregen erzeugen könnten. Anhand dieser Modellsimulationen kann man rückschließen, daß es eine Art Schwellwert-aerosolanzahlkonzentration geben könnte, ab der die Niederschlagsbildung unterdrückt wird. Die Modellresultate deuten darauf hin, daß in sehr trockenen Regionen, in denen Sandstürme auftreten, die warme Niederschlagsbildung unterdrückt wird und sich die Wüste damit praktisch selbst erhält. Die Resultate dieser Untersuchungen wurden bei der International Aerosol Conference, Leipzig, vorgestellt (Wurzler et al., 2001).

Im Rahmen der zweiten Projektphase wurden die Auswirkungen der aktivierbaren Aerosolfraktion auf die Tropfengrößenverteilung und das Tropfengefrieren bearbeitet. Der Einfluß der chemischen Komposition und deren Verteilung als Funktion der Partikelgröße auf die Tropfenbildung und das Tropfengefrieren wurde anhand eines Luftpaketmodells mit detaillierter Mikrophysik untersucht.

Es wurde ein Modul zur Bestimmung der Gefrierpunktserniedrigung durch die in den Tropfen gelösten Inhaltsstoffe, basierend auf den Ansätzen beschrieben in Moore (1972) und Brdicka (1958), entwickelt und mit dem Bigg'schen Gefrieransatz (siehe z.B. Pruppacher and Klett (1997), S. 348–349) gekoppelt. Zudem wurden Abschätzungen zur Gefrierzeit der Tropfen als Funktion der Tropfengröße und Umgebungstemperatur vorgenommen, basierend auf dem in Pruppacher and Klett (1997) beschriebenen Ansatz (siehe S. 675–677). Diese Abschätzungen basieren auf der Annahme reiner Wassertropfen. Je kleiner der betrachtete Tropfen ist, desto schneller kann er gefrieren. So benötigen Tropfen mit Radien im μm Bereich wenige Bruchteile von Sekunden um durchzufrieren. Große Tropfen mit Radien von mehreren hundert μm bis hin zu mm benötigen Gefrierzeiten von mehreren Sekunden bis hin zu Minuten. Anhand dieser Abschätzungen kann bestimmt werden, ob ein Tropfen einer bestimmten Größe, der bei einer bestimmten Temperatur in Abhängigkeit seiner Kontamination frieren kann, innerhalb eines Modellzeitschritts komplett gefroren ist oder ob dieser Tropfen aus einem Gemisch der festen und flüssigen Phase besteht. Dieser Ansatz kann auch für die Betrachtung des Schmelzverhaltens der gefrorenen Tropfen angewandt werden. Diese Betrachtungen sind zur verbesserten Beschreibung des Energiebudgets der Wolke, bei dem die latente Umwandlungswärme sowie Ort und Zeit der Abgabe bzw. des Verbrauchs selbiger eine wichtige

Rolle spielt, notwendig.

Aufbauend auf Projektphase 1 wurden typische kontinentale, remote kontinentale, rurale und maritime Szenarien sowohl bezüglich der Aerosolanzahlen, -größenverteilungen und chemischen Zusammensetzung als auch bezüglich der Temperatur- und Feuchteprofile für die Modellsimulationen verwendet. Zunächst wurden die Auswirkungen der wasserlöslichen Fraktion der Aerosole auf das Tropfengefrieren untersucht. Allen Modellstudien war gemein, daß relativ kleine Tropfen (Tropfen mit Radien kleiner als $5 \mu m$) durch ihre relativ hohe Kontamination nur bei sehr tiefen Temperaturen (im Bereich von -30 C) anfangen zu gefrieren. Je größer die Tropfen waren, desto geringer war die Auswirkung der Gefrierpunktserniedrigung durch die gelösten Inhaltsstoffe. Verallgemeinernd kann man sagen, daß in den betrachteten Fällen die gelösten Inhaltsstoffe in allen niederschlagsfähigen Tropfen mit Radien größer als ca $100 \mu m$ bereits so stark verdünnt waren, daß der Effekt der Gefrierpunktserniedrigung vernachlässigbar wurde. So müßte zum Beispiel ein Tropfen mit einem Radius von $200 \mu m$ ein komplett lösliches Aerosolteilchen von mindestens $10 \mu m$ Trockenradius beinhalten um bei -15 C durch die Gefrierpunktserniedrigung nicht zu gefrieren.

Untersuchungen der Auswirkungen der wasserunlöslichen Fraktion der Aerosole auf das Tropfengefrieren, wurden ebenfalls durchgeführt. Hierbei waren eine Reihe von verschiedenen Fällen zu betrachten:

Aufbauend auf einer Untersuchung der Auswirkungen von Mineralstaubpartikeln auf die Wolkenmikrophysik sowie über die Wolkenprozessierung des Aerosols (siehe Wurzler et al., 2000c) wurden die Effekte der Aerosole auf das Tropfengefrieren untersucht. In der ersten Fallstudie wurde angesetzt, daß eine maritime Aerosolverteilung mit unbenetzbaren Mineralstaubpartikeln koexistiert. Bei der Wolkenbildung resultiert ein sehr enges Tropfenspektrum und es bilden sich keine Niederschlagsteilchen. Ein weiterer Effekt dieser engen Tropfenverteilung war, daß die Wolke sich nicht in solche Höhen weiterentwickelt hat, daß Gefrieren einsetzte. Bei der zweiten und dritten Fallstudie wurde die Wolke mit dem prozessierten Aerosol der Vorgängerwolke initialisiert. In beiden Fällen bildeten sich niederschlagsfähige Tropfen, die Wolke erreichte größere Höhen als im ersten Fall und die großen Tropfen konnten gefrieren. Die Resultate der zweiten und dritten Fallstudie bezüglich der Tropfengrößenverteilungen und der gefrorenen Tropfen waren jedoch trotz eines sehr unterschiedlichen Anfangsaerosols sehr ähnlich. Deswegen kamen die folgenden Fragen auf: sind die Auswirkungen unterschiedlicher Verteilungen und chemischer Zusammensetzung des Aerosols in manchen Situationen geringer als bislang angenommen oder handelt es sich um ein Artefakt des Modells? In einem Luftpaketmodell fällt Niederschlag nicht aus und somit wird die Bildung von niederschlagsfähigen Tropfen und Eisteilchen durch Kollisionsprozesse etwas überschätzt. Zudem werden Effekte der Wolkendynamik nur sehr rudimentär berücksichtigt. Die beiden genannten Gründe legten die Vermutung nahe, daß nicht das Aerosol sondern die Modellannahmen in der betrachteten Situation zu der verblüffenden Ähnlichkeit der Resultate führte. Diese Frage wurde in enger Zusammenarbeit mit Yan Yin, School of the Environment, Leeds University, UK, Zev Levin, Department of Geophysics and Planetary Sciences, Tel Aviv University, Israel, und Tamir Reisin, Soreq, Nuclear Research Center, Israel, untersucht. Das in Israel entwickelte zwei-dimensionale dynamische Wolkenmodell mit detaillierter Behandlung der Wolkenmikrophysik (Reisin et al., 1996, Yin et al., 2000) wurde mit den Resultaten des Luftpaketmodells initialisiert. Hierbei zeigte sich, daß sich bei der ersten Fallstudie ähnlich wie im Luftpaketmodell nur sehr wenig Niederschlag bildete. Zudem war die Entwicklung und somit auch die Ausbildung der Eisphase der Wolke geringer als in den beiden anderen Fällen, in denen mit dem wolkenprozessierten Aerosol initialisiert wurde.

Bei der zweiten und dritten Fallstudie, bei denen die Wolke jeweils mit dem prozessierten Aerosol der Vorgängerwolke initialisiert wurde, traten große Unterschiede sowohl in der Wolken- als auch in der Niederschlagsentwicklung auf. Die Wolke, die sich in der dritten Fallstudie bildete, wies zudem eine wesentlich schnellere und stärkere Entwicklung der Eisphase auf. Resultate dieser Untersuchungen wurden auf der 6th International Aerosol Conference in Prag (Reisin et al., 1999), dem 2nd Genter Symposium on Geoscience in Nazareth (Wurzler et al., 1999a) und der International Conference on Clouds and Precipitation in Reno (Yin et al., 2000a) vorgestellt und im Journal of Geophysical Research (Yin et al., 2002) publiziert. Diese Modellsimulationen beinhalteten allerdings nicht den Einfluß unlöslicher Partikel auf das Tropfengefrieren im Immersionsmode. Wie die später in diesem Bericht beschriebenen Auswirkungen unlöslicher Partikel auf das Tropfengefrieren vermuten lassen, würde sich die Eisphase sogar noch schneller und bei höheren Temperaturen bilden.

In weiteren Studien wurde das in Israel entwickelte zwei dimensionale dynamische Wolkenmodell mit detaillierter Behandlung der Wolkenmikrophysik (Reisin et al., 1996, Yin et al., 2000) mit den Resultaten des Luftpaketmodells initialisiert. Hierbei wurden die Anzahlkonzentration und die Größenverteilung der Aerosolpartikel variiert und die Auswirkungen auf die Eisbildung und die Niederschlagsbildung betrachtet. Ziel der Untersuchung war, die Auswirkung der Alterung und Wolkenprozessierung der Aerosolpartikel auf die Wolkenmikrophysik und die Niederschlagsbildung abzuschätzen. Die vorliegenden Resultate deuten darauf hin, daß je jünger das Mineralstaubaerosol ist, desto kontinentaler ist die Wolkenmikrophysik. Das bedeutet, daß Niederschlag größtenteils über die Eisphase gebildet wird, wobei das Tropfengefrieren eine erhebliche Rolle spielt. Zudem sind die meisten Tropfen und Eisteilchen so klein, daß sie wieder verdunsten und prozessierte Aerosolpartikel hinterlassen. Je häufiger die Aerosolpartikel durch einen Wolkenzyklus gehen und je stärker die Aerosolpartikelpopulation bereits gealtert ist, desto mehr vergleichsweise große Aerosolpartikel sind vorhanden und die Niederschlagsbildung über Tropfenkollisionen nimmt zu. Die Resultate dieser Untersuchungen wurden bei der International Aerosol Conference, Leipzig, vorgestellt (Levin et al., 2001).

Eine weitere Studie, die auf Daten aus Feldmeßkampagnen basiert, und die Wolkenprozessierung von kontinentalem Aerosol zum Inhalt hat, wurde neben den bereits genannten Untersuchungen durchgeführt und beim Journal of Geophysical Research publiziert (Krämer et al., 2000). Hierzu wurden Messungen von Stratusbewölkung auf dem Kleinen Feldberg verwendet. Die Tropfengrößenverteilung zeigte eine typischen bimodale Struktur mit der ersten Mode zwischen 3 und 5 μm und der zweiten Mode zwischen 5 und 10 μm Radius. Folgende wichtige Schlußfolgerungen konnten gezogen werden:

- Kleine aktivierte Partikel wachsen in der Regel zu Tropfen der ersten Mode.
- Große Partikel können zu größeren Tropfen der zweiten Mode anwachsen.
- Die absolute Masse des gelösten Gases ist größer für die Tropfen der größeren Mode.
- Die relative Masse des gelösten Gases im Verleich zur Tropfenmasse ist größer für die Tropfen der kleineren Mode.

Der Prozessierungsgrad der Partikel ist am größten für Partikel mit einem Radius kleiner als 0.11 μm , deren Radius um einen Faktor zwischen 1,8 und 3 anwachsen kann. Schwächere Prozessierung findet statt für Partikelgrößen größer als 0.1 μm .

Die Prozessierung des Aerosols ist nicht nur wichtig für das Verhalten in nachfolgenden Wolkenbildungsprozessen. Darüberhinaus führt eine Modifikation der Aerosolgrößenverteilung zu einer Änderung des Strahlungseffektes der Aerosolpartikel und hat somit Auswirkungen auf das Klima der Erde.

Eine offene Frage, die mit dem im Projektantrag beschriebenen Modell nicht beantwortet werden konnte, war die Koexistenz von Tropfen gleicher Größe aber unterschiedlicher Kontamination und die Auswirkungen hiervon auf das Tropfengefrieren. Deswegen wurde in ein Wolkenmodell, welches die Mikrophysik als Zwei-Komponenten-System behandelt (Bott, 1997, 1999, Reisin et al., 1998, Wurzler et al., 1998c), das Tropfengefrieren eingebaut. Die Unterschiede in der Darstellung der Wolkenmikrophysik zwischen dem Zwei-Komponenten-System und der im Projektantrag beschriebenen Mikrophysik sind schematisch in Abbildung 2 dargestellt.

Voruntersuchungen zeigten, daß anhand dieses Modells Tropfen gleicher Größe aber mit unterschiedlichem Aggregatzustand, bedingt durch Kontaminationsunterschiede und somit unterschiedlicher Gefrierpunktsniedrigung, beschrieben werden können. Dieser vielversprechende Ansatz für das Gefrierverhalten von Tropfen wurde weiterverfolgt. Resultate der Vorstudien wurden bei der International Conference of Clouds and Precipitation, Reno (Wurzler and Bott, 2000a), der European Aerosol Conference 2000, Dublin, (Wurzler and Bott, 2000b) sowie im Rahmen eines eingeladenen Vortrages auf dem WMO cloud modeling workshop, Glenwood Springs, USA, vorgestellt. Es wurde ein zweidimensionales Kollisionsverfahren implementiert (Reisin and Wurzler, 2001), und auf die Kollisionen zwischen flüssigen Tropfen und gefrorenen Tropfen sowie den Transport der gelösten Aerosolpartikel und des Anteils an flüssigem und gefrorenem Material erweitert.

Eine Untersuchung der Auswirkungen unlöslicher Materialien (wie zum Beispiel biologischer Aerosolpartikel und Mineralstaubpartikel) auf das Tropfengefrieren wurde durchgeführt. Hierbei wurde auf die neuesten Laboruntersuchungen zu biologischen Partikeln und deren Auswirkungen auf das Tropfengefrieren vom Institut für Physik der Atmosphäre (Karoline Diehl, Subir Mitra, Sabine Matthias-Maser und Ruprecht Jaenicke) zurückgegriffen. Die Laborergebnisse wurden in parametrisierter Form in das Luftpaketmodell eingebaut. Das Modell beinhaltet die Auswirkungen unterschiedlicher unlöslicher Partikel (z.B. biologische Partikel, Mineralstaub, Ruß) auf das Immersionsgefrieren von Tropfen. Unter Immersionsgefrieren versteht man, daß sich die unlöslichen Partikel im Tropfen befinden. Sie können dort entweder durch Aktivierung von Partikeln mit unlöslichem Anteil oder durch Stoßprozesse zwischen Partikeln und Tropfen hineingelangt sein. Erste Resultate dieser Studien wurden bei der International Aerosol Conference, Leipzig, vorgestellt (Diehl et al., 2001). Ergebnisse dieser Studien sind zur Publikation beim Journal of Geophysical Research eingereicht (Diehl and Wurzler, 2002). Die Methode sowie Vergleiche mit weiteren Messungen und Modellen werden ebenfalls in dieser Publikation detailliert beschrieben. Im allgemeinen läßt sich sagen, daß unlösliche Partikel bewirken daß die Tropfen bei wesentlich höheren Temperaturen gefrieren können als pure Lösungstropfen. Damit sind die Effekte löslicher und unlöslicher Partikel auf das Tropfengefrieren im Immersionsmode also gegenläufig. Insbesondere die biologischen Partikel bewirken eine signifikante Anhebung der Gefriertemperatur der Tropfen im Immersionsmode. Der schlechteste Gefrierkeim im Immersionsmode scheint Ruß zu sein. Jedoch sollte hierbei beachtet werden, daß es sich bei den für die Modellentwicklung verwendeten Laborexperimenten um Kerosinruß handelt. Andere Rußarten könnten eine ähnliche Varianz der Gefrierpunktsanhebung bewirken wie unterschiedliche Mineralstaubarten. Beispiele der Modellresultate für 3 verschiedene Temperaturen sind in den Abbildungen 3, 4 und 5

dargestellt. Beim Immersionsgefrieren wird eine Zweiteilung des Mikrophysikfeldes bewirkt. Die durchgezogenen Linien stellen die Schwelle zwischen reinen Wassertropfen, die entsprechende Mengen (die x-Achse stellt hier die Größe der unlöslichen Partikel in den Tropfen dar) der verschiedenen unlöslichen Partikeltypen beinhalten dar, die bei der entsprechenden Temperatur gefrieren können oder eben flüssig bleiben. Die gestrichelten Linien stellen die Auswirkungen der Gefrierpunktserniedrigung für Lösungstropfen, die unlösliche Partikel enthalten dar. Hier ist die x-Achse dann die Größe der in den Tropfen enthaltenen löslichen Partikel. Tropfen oberhalb der durchgezogenen bzw. gestrichelten Linien können gefrieren, unterhalb bleiben die unterkühlten Tropfen flüssig. Bereits bei -10°C können biologische Partikel als Eiskeime wirken. Mineralstaubpartikel werden bereits bei -20°C als Eiskeime aktiv, allerdings nur bei recht großen Tropfen. Variationen der chemischen Zusammensetzung der löslichen Inhaltsstoffe der Tropfen führten zu recht geringen Änderungen des Tropfengefrierens im Immersionsmode. Bei relativ großen Tropfen ist der Effekt der Gefrierpunktserniedrigung durch gelöste Stoffe nur sehr gering, jedoch bei kleinen hochkonzentrierten Lösungstropfen spielt dieser Effekt eine große Rolle.

Aufgrund der komplexen Wechselwirkungen zwischen Aerosolpartikeln und Wolken konnten aus den Resultaten der detaillierten Modelle keine allgemeingültigen Parametrisierungsansätze für die Tropfenbildung gewonnen werden. Das detaillierte Modell ermöglicht jedoch die Erstellung von look-up-tables für die Verwendung in großräumigen Modellen.

Die Bearbeitung des Tropfengefrierens verlief erfolgreich. Insbesondere wurde ein neuer parametrisierter Ansatz für die Prognose des heterogenen Tropfengefrierens entwickelt, der sowohl in detaillierten Wolkenmodellen als auch in großräumigen Modellen (Wettervorhersage, Klimamodelle) eine signifikante Verbesserung der Prognose der Menge, Art und des Aggregatzustands von Wolken- und Niederschlagspartikeln bewirkt. Diese Arbeiten erfolgten in enger Kooperation mit dem AFS-Projekt 07AF219/3 sowie mit den AFO2000-Projektverbänden MODMEP und EFEU. Die Resultate stehen durch die Publikationen einem breiten Fachpublikum zur Verfügung und werden im Rahmen von AFO2000 weiterverwandt.

Literatur und Konferenzbeiträge

- Bott, A., 1997: A numerical model of the cloud-topped planetary boundary -layer: Impact of aerosol particles on radiative forcing of stratiform clouds. Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 123, 631-656.*
- Bott, A., 1999: A numerical model of the cloud-topped planetary boundary-layer: Chemistry in marine stratus and the effects on aerosol particles. Atmos. Environ., 33, 1921-1936.*
- Bott, A., A. Kerkweg, T.G. Reisin and S. Wurzler, 2002: On the cloud processing of aerosol particles: an entraining air parcel model with two-dimensional spectral cloud microphysics and a new formulation of the collection kernel. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, (in Vorbereitung)*
- Diehl, K., S. Matthias-Maser, M. Krämer, S.K. Mitra, A. Bott and S. Wurzler, 2001: Laboratory and model studies on the influence of biological aerosol particles on drop freezing. European Aerosol Conference, Leipzig, September 2001 Journal of Aerosol Sciences, Vol. 32, Suppl. 1, S927-S928*

- Diehl, K., and S. Wurzler, 2002a: A freezing module for heterogeneous drop freezing in immersion and contact mode. *EGS*, Nizza, April 2002
- Diehl, K., and S. Wurzler, 2002b: A freezing module for heterogeneous drop freezing in immersion mode *Journal of Geophysical Research*, (eingereicht)
- Flossmann, A.I., W.D. Hall, and H.R. Pruppacher, 1985: A theoretical study of the wet removal of atmospheric pollutants, part I, The redistribution of aerosol particles captured through nucleation and impaction scavenging by growing cloud drops. *J. Atmos. Sci.*, 42, 582-606
- Kerkweg, A., S. Wurzler, T.G. Reisin and A. Bott, 2002: On the cloud processing of aerosol particles: an entraining air parcel model with two-dimensional spectral cloud microphysics and a new formulation of the collection kernel. *EGS*, Nizza, April 2002
- Krämer, M., N. Beltz, D. Schell, W. Elbert, L. Schütz, C. Sprengart-Eichel and S. Wurzler, 2000: Cloud processing of continental aerosol particles: Experimental investigations for different drop sizes. *J. of Geophys. Res.*, 105, D9, 11,739-11,752
- Levin, Z., S.C. Wurzler and T.G. Reisin, 1998: Modification of mineral dust particles by cloud processing and subsequent effects on drop size distributions. *AMS Conference on Cloud Physics*, August 17–21 1998, Seattle, USA (Vortrag)
- Levin, Z., S. Wurzler, E. Ganor, Y. Yin and A. Teller, 2001: On the modification of mineral dust particles based on their path of transport and the effects on mixed phase clouds and precipitation. *European Aerosol Conference*, Leipzig, September 2001 *Journal of Aerosol Sciences*, Vol. 32, Suppl. 1, S201–S202
- Reisin, T., G., Z. Levin, and S. Tzivion, 1996: Rain production in convective clouds as simulated in an axisymmetric model with detailed microphysics. Part II. Effects varying drop and ice initialization. *J. Atmos. Sci.*, **53**, 1815–1837
- Reisin, T.G., and S.C. Wurzler, 1999: A new insight into cloud-aerosol interactions: numerical simulations using a two component distribution function. *J. Aerosol Sci.*, Vol. **30**, 1252
- Reisin, T., and S. Wurzler, 2000: Implementation of a numerical solution of the multi-component kinetic collection equation (MKCE) on parallel computers. *J. of Parallel and Distributed Comp.* (zur Publikation angenommen)
- Reisin, T.G., S.C. Wurzler and A. Bott, 1998: A new insight into cloud-aerosol interactions: Numerical simulations using a two-dimensional distribution function. *J. of Aeros. Sci.*, Suppl. 1, **29**, S785-S786
- Reisin, T.G., S.C. Wurzler and Z. Levin, 1999: The modification of size and composition of CCN by cloud processing of mineral dust particles and the effects on cloud microphysics.
6th International Aerosol Conference, Prag (Vortrag)
J. Aerosol Sci., Vol. **30**, Suppl. 1, S25-S26
- Wurzler, S.C., A. Bott, C. Sprengart-Eichel, M. Krämer and S. Matthias-Maser, 1998a: The influence of the biological and the water-soluble fraction of aerosol particles on cloud microphysics: numerical case study for a marine situation.

- Wurzler, S.C., Z. Levin and T.G. Reisin, 1998b: Modification of mineral dust particles by cloud processing and subsequent effects on drop size distributions. *First Israel German Bi-National Aerosol Workshop on Industrial and Atmospheric Aerosols*, Shefayim, Israel, June 2–3 1998 (Vortrag)
- Wurzler, S.C., T.G. Reisin and A. Bott, 1998c: Parallelization of cloud microphysical code: numerical simulations using a two component distribution function. *HiPer 98, Annual Conference on High Performance Computing on Hewlett-Packard Systems, Zuerich, Switzerland, Proceedings*, 323-237 (Vortrag).
- Wurzler, S.C., Z. Levin and T.G. Reisin, 1999a: The modification of size and composition of CCN by cloud processing of mineral dust particles and the effects on cloud microphysics. *2nd Genter Symposium on Geoscience: Research Workshop on the Interactions between Chemistry, Physics and Dynamics in the Troposphere*. 24–29. Oktober 1999, Nazareth, Israel (eingeladener Vortrag)
- Wurzler, S., A. Bott, S. Gruber, K. Diehl, S. Matthias–Maser, 1999b: The influence of biological particles on cloud microphysics. *6th International Aerosol Conference, Prag* (Vortrag)
J. Aerosol Sci., Vol. **30**, Suppl. 1, S811-S812
- Wurzler, S., and A. Bott, 2000a: Numerical simulations of cloud microphysics and drop freezing as function of drop contamination. *International Conference on Clouds and Precipitation, Reno, August 2000* (Kurzvortrag plus Poster).
Proceedings of the International Conference on Clouds and Precipitation, Reno, August 2000
- Wurzler, S., and A. Bott, 2000b: Numerical simulations of cloud microphysics and drop freezing as function of drop contamination. *International Aerosol Conference, Dublin, September 2000, Journal of Aerosol Sciences*, Vol. 31, Suppl. 1, S152–S153
- Wurzler, S.C., T.G. Reisin and Z. Levin, 2000c: Modification of mineral dust particles by cloud processing and subsequent effects on drop size distributions. *J. of Geophys. Res.*, **105**, D4, 4501–4512.
- Wurzler, S., D. Rosenfeld and Y. Rudich, 2001: Some effects of mineral dust particles on cloud microphysics: numerical investigation of a dust storm situation. *European Aerosol Conference, Leipzig, September 2001 Journal of Aerosol Sciences*, S929–S930
- Yin, Y., S. Wurzler, T.G. Reisin and Z. Levin, 2000a: The modification of size and composition of CCN by cloud processing of mineral dust particles and the effects on cloud microphysics. *International Conference on Clouds and Precipitation, Reno, August 2000* (Kurzvortrag plus Poster).
Proceedings of the International Conference on Clouds and Precipitation, Reno, August 2000

Yin, Y., Z. Levin, T.G. Reisin, and S. Tzivion, 2000b: The effects of giant cloud condensation nuclei on the development of precipitation in convective clouds – a numerical study. Atmos. Res. (in press)

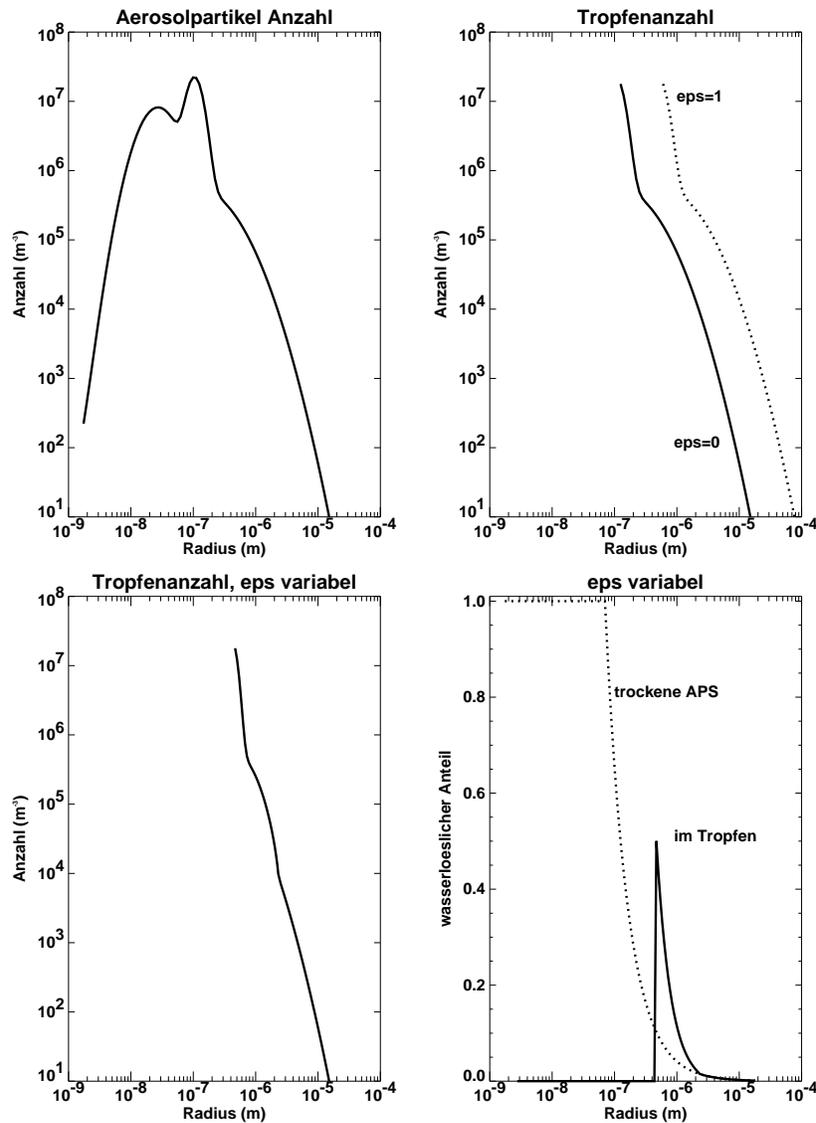
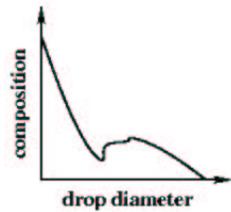
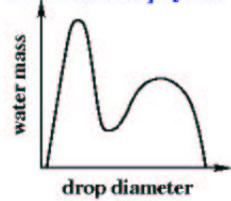


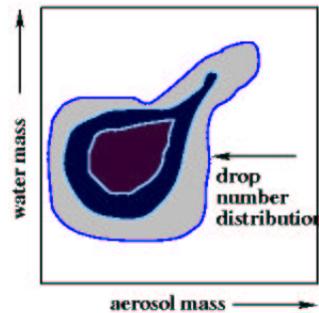
Abbildung 1: Beispielsimulation zur Auswirkung des wasserlöslichen Anteils (eps) der Aerosolpartikel auf die Wolkenmikrophysik. Links oben: Anfangsaerosolpartikelanzahlverteilung. Rechts oben: Aus dieser Partikelanzahlverteilung resultierende Tropfengrößenanzahlverteilung als Funktion der Tropfengröße. Sensitivitätsstudie für komplett lösliche ($\text{eps}=1$) und komplett unlösliche benetzbare ($\text{eps}=0$) Aerosolpartikel. Unten links: Aus dieser Partikelanzahlverteilung resultierende Tropfengrößenanzahlverteilung als Funktion der Tropfengröße für partikelradienabhängige wasserlösliche Anteile, die im bild daneben dargestellt werden. Unten rechts: Wasserlösliche Anteile der Aerosolpartikel als Funktion des Partikelradius in der trockenen Partikelverteilung und in den Tropfen.

Traditional treatment of detailed microphysics



Drops of the same size have identical compositions
>> freeze at the same temperature

Two component treatment of detailed microphysics



Drops of same size can have different compositions
>> freeze at different temperatures

Abbildung 2: Schematische Darstellung der traditionellen Beschreibung der Wolkenmikrophysik und der Zwei-Komponenten-Darstellung der Wolkenmikrophysik. Die traditionelle Darstellung hat den Nachteil, daß Tropfen der gleichen Größe identische Inhaltsstoffe haben. Bei der Zwei-Komponenten-Darstellung können Tropfen der gleichen Größe unterschiedliche Inhaltsstoffe haben. Diese Darstellung kommt damit Beobachtungen näher, hat aber den Nachteil, daß sie numerisch wesentlich aufwendiger ist als die traditionelle Darstellungsweise.

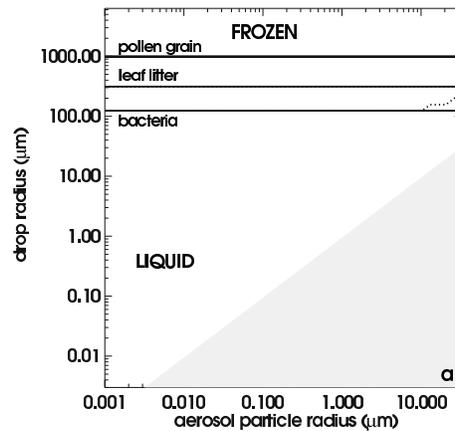


Abbildung 3: Verteilung von unterkühlten flüssigen Tropfen und von gefrorenen Tropfen in einem zweidimensionalen Feld das durch die Tropfen und Aerosolpartikelradien aufgespannt wird bei -10°C . Aerosolpartikelradius steht hier für den Äquivalentradius der löslichen Massenfraktion der Partikel in den Tropfen bei der Betrachtung von Lösungstropfen. Die unlöslichen Partikel können jede beliebige Größe haben. Im Falle reiner Wassertropfen beschreibt die x-Achse den Radius der unlöslichen Partikel. Das hellgraue Feld stellt den Part dar, der physikalisch nicht möglich ist. Durchgezogene Linien: reine Wassertropfen mit unlöslichen Partikeln. Gestrichelte Linien: Lösungstropfen mit unlöslichen Partikeln. Zu sehen sind die Auswirkungen biologischer Partikel (a). Die übrigen unlöslichen Partikel sind bei dieser Temperatur noch nicht als Eiskeim aktiv.

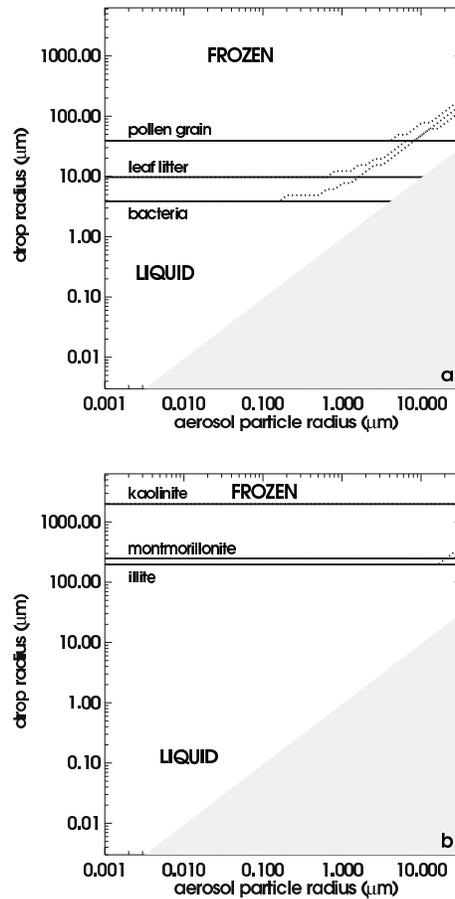


Abbildung 4: Verteilung von unterkühlten flüssigen Tropfen und von gefrorenen Tropfen in einem zweidimensionalen Feld das durch die Tropfen und Aerosolpartikelradien aufgespannt wird bei -20°C . Aerosolpartikelradius steht hier für den Äquivalentradius der löslichen Massenfraktion der Partikel in den Tropfen bei der Betrachtung von Lösungstropfen. Die unlöslichen Partikel können jede beliebige Größe haben. Im Falle reiner Wassertropfen beschreibt die x-Achse den Radius der unlöslichen Partikel. Das hellgraue Feld stellt den Part dar, der physikalisch nicht möglich ist. Durchgezogene Linien: reine Wassertropfen mit unlöslichen Partikeln. Gestrichelte Linien: Lösungstropfen mit unlöslichen Partikeln. Zu sehen sind die Auswirkungen biologischer Partikel (a) und von Mineralstäuben (b). Ruß ist noch nicht als Eiskeim aktiv.

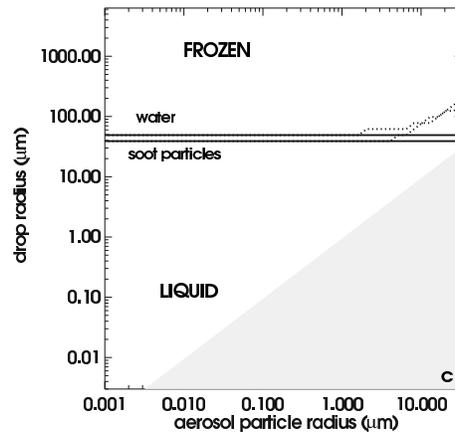
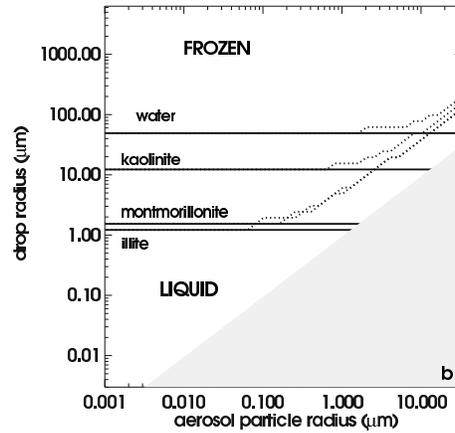
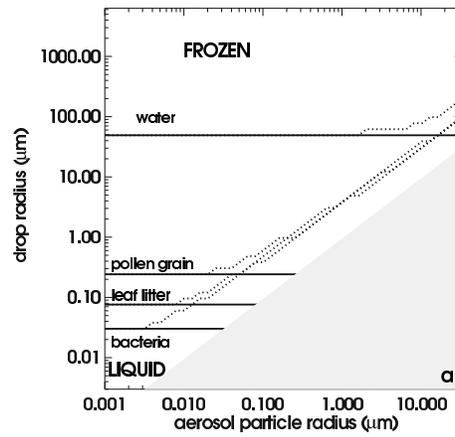


Abbildung 5: Verteilung von unterkühlten flüssigen Tropfen und von gefrorenen Tropfen in einem zweidimensionalen Feld das durch die Tropfen und Aerosolpartikelradien aufgespannt wird bei -35°C . Aerosolpartikelradius steht hier für den Äquivalentradius der löslichen Massenfraktion der Partikel in den Tropfen bei der Betrachtung von Lösungstropfen. Die unlöslichen Partikel können jede beliebige Größe haben. Im Falle reiner Wassertropfen beschreibt die x-Achse den Radius der unlöslichen Partikel. Das hellgraue Feld stellt den Part dar, der physikalisch nicht möglich ist. Durchgezogene Linien: reine Wassertropfen mit unlöslichen Partikeln. Gestrichelte Linien: Lösungstropfen mit unlöslichen Partikeln. Zu sehen sind die Auswirkungen biologischer Partikel (a), von Mineralstäuben (b) und Ruß (c).