

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 Bott<sup>1</sup>, Dr. Sabine Wurzler<sup>2</sup> und Tanja  
Winterrath<sup>3</sup>**

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

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

<sup>3</sup> 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 Zykluses 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  $\text{SO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$  und  $\text{O}_3$  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  $\mu m$  Bereich wenige Bruchteile von Sekunden um durchzufrieren. Große Tropfen mit Radien von mehreren hundert  $\mu m$  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