

Abschlussbericht zum BMBF-Projekt

SO235-OASIS

Organische sehr kurzlebige Substanzen und ihr Luft-Wasser-Austausch vom Indischen Ozean bis in die Stratosphäre und SO234/2 SPACES Ausbildung

(01.04.2014-31.07.2016)

Zuwendungsempfänger: GEOMAR Helmholtz-Zentrum für Ozeanforschung Kiel

Förderkennzeichen: 03G0235A

Verantwortlich für den Inhalt dieses Berichtes:

Dr. Birgit Quack, GEOMAR Helmholtz-Zentrum für Ozeanforschung Kiel

GEOMAR Helmholtz-Zentrum für Ozeanforschung Kiel

Düsternbrooker Weg 20

D-24105 Kiel

Tel: +49 431 6004206

Fax: +49 431 6004205

Email: bquack@geomar.de



SO-235 OASIS: OrgAnische sehr kurzlebige Substanzen und ihr Luft-Wasser-Austausch vom Indischen Ozean bis in die Stratosphäre und SO 234-2 SPACES Ausbildung

I. Kurzdarstellung

I.1. Aufgabenstellung

Aufgrund des Klimawandels und dem durch das Montreal Protokoll erfolgenden Rückgang anthropogenen Chlors in der Stratosphäre wird sich der Einfluss von marinen halogenierten, sehr kurzlebigen Substanzen (Very Short-Lived Substances, VSLS) aus dem Ozean auf die stratosphärische Ozonzerstörung verändern. Halogenierte VSLS spielen eine bedeutende Rolle beim heutigen Ozonabbau, insbesondere in Kombination mit erhöhten stratosphärischen Sulfat-Aerosolkonzentrationen. Wo und in welchen Mengen der stratosphärische Halogen- und Schwefelaerosolgehalt aus natürlichen Quellen und insbesondere aus ozeanischen Emissionen in die Stratosphäre gelangt und wie sich die Einträge entwickeln, ist jedoch unklar. Es besteht die Notwendigkeit mögliche Änderungen und Rückkopplungen in einem zukünftigen Klima, besser zu verstehen. Die folgenden Fragenstellungen sollten im SONNE Antrag OASIS beantwortet werden: Welche Rolle spielen die ozeanischen Emissionen sehr kurzlebiger halogenerter und schwefelhaltiger Substanzen (z.B. CHBr_3 , CH_3I , DMS) aus dem tropischen Indischen Ozean für die Stratosphäre während Südwestmonsun (Juli-August Saison). Was sind ihre Quellen und Quellstärken für die Troposphäre und wie stark ist der Luftmassenaustausch mit der Stratosphäre?

I.2. Voraussetzungen unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Im Projekt sollte die Bedeutung des Indischen Ozeans und des Südwestmonsuns für den stratosphärischen Halogen- und Schwefelgehalt untersucht werden. Dazu wurden zwei Fahrtabschnitte mit RV Sonne für den Westindischen Ozean beantragt und als SO234-2 und SO235 bewilligt, die als Trainings- und Pilotstudie geplant wurden. Der erste Fahrtabschnitt von Durban-Südafrika bis Port Louis-Mauritius (08. bis 20. Juli 2014) war eine Ausbildungsfahrt für deutsche und afrikanische Studenten im Rahmen des BMBF Programms SPACES ("Science Partnerships for the Assessment of Complex Earth System Processes"), auf dem schon an den zentralen Fragestellungen des Projektes gearbeitet wurde. Fünfzehn Studenten aus Südafrika, Namibia und Deutschland nahmen, zusammen mit neun Wissenschaftlern und einem Beobachter aus Madagaskar, daran teil. Die Studenten halfen bei den wissenschaftlichen meteorologischen, chemischen und biologischen Untersuchungen und lernten die Methoden und Fragestellungen zum Luft-Meerwasseraustausch insbesondere im West Indik kennen. In Mauritius erfolgte der Mannschaftswechsel. An der zweiten Fahrt von Port Louis-Mauritius nach Malé-Malediven (23. Juli bis 07. August 2014) nahmen dreiundzwanzig Wissenschaftler aus Deutschland, Österreich, China, Italien, Malaysia, Großbritannien und USA sowie ein Beobachter aus Mauritius teil. Die Untersuchungen zu den Emissionen halogenerter und einiger schwefelhaltiger Verbindungen wurden erstmalig im Indischen Ozean durchgeführt. Viele Parameter wurden schon an Bord gemessen und die während der Reise gesammelten Proben wurden Ende August 2014 von Sri Lanka verschickt, und in den Heimatlaboren untersucht. An diesem Projekt beteiligt waren international anerkannte Wissenschaftlerinnen mit Expertise im Bereich mariner Halogen- und Schwefelverbindungen in Atmosphäre und Ozean, sowie Biologen, Biogeochemiker sowie weitere Atmosphärenwissenschaftler. Globale Klimatologien und Modellprognosen einiger Spurenstoffe waren zu Projektbeginn vorhanden (Lana et al., 2011; Ziska et al., 2013; Stemmler et al 2015), die auf Grund verschiedener Annahmen zeigten, dass der indische Ozean eine wichtige Quelle halogenerter und schwefelhaltiger Verbindungen für die Troposphäre und Stratosphäre darstellen würde. Jedoch fehlten vor OASIS Projektbeginn größtenteils Beobachtungsgrundlagen für diese Annahmen im tropischen West Indik. Die Auswertearbeiten wurden im Wesentlichen am GEOMAR

in Kiel (Dr. Birgit Quack, OASIS Projekt Leiterin) und an der Universität Oslo (Prof. Dr. Kirstin Krüger, OASIS Antragstellerin und Fahrtleiterin) durchgeführt.

I.3. Planung und Ablauf des Vorhabens

In diesem Vorhaben sollten natürliche kurzlebige halogen- und schwefelhaltige Substanzen (Englisch: very short lived substances, VSLS) aus dem tropischen Indischen Ozean und ihr Luftmassenaustausch bis in die Stratosphäre mittels Schiffsmessungen und anschließender Modellierung untersucht werden. Die dafür geplanten Forschungsseereisen SO234-2 und SO235 wurden erfolgreich von Durban (08.07.2014) über Port Louis (20.07.-23.07.2014) nach Malé (07.08.2014) durchgeführt (Abbildung 1).

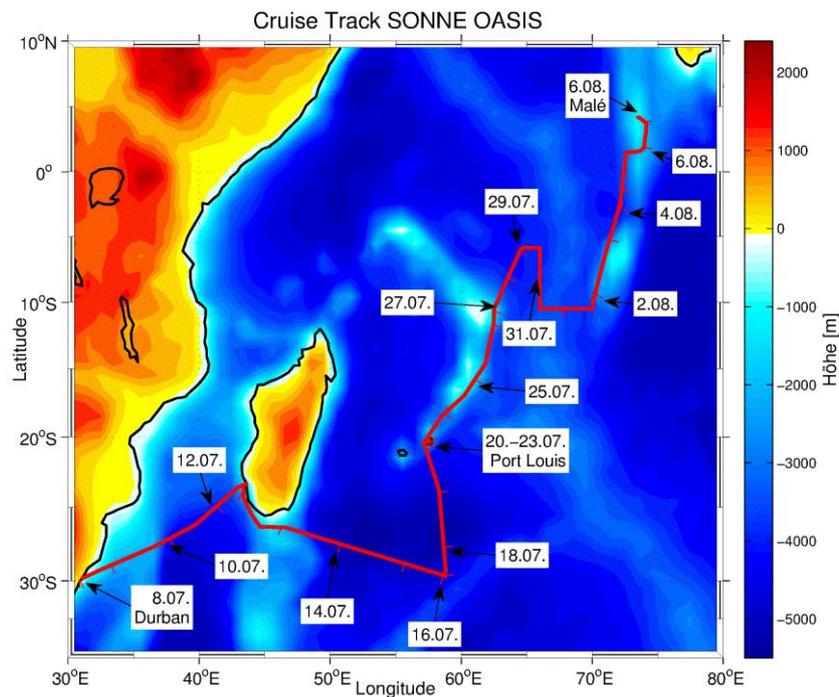
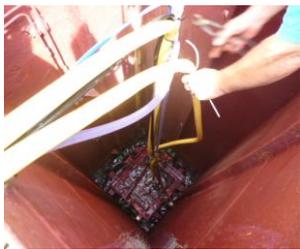


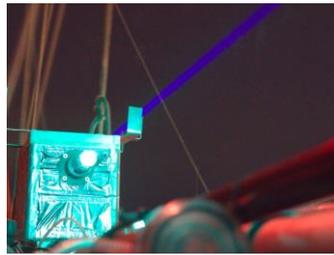
Abbildung 1: Fahrtroute der Seereisen SO234-2 und SO235 im Juli, August 2014 inklusive Daten.

Während der SO234-2 und SO235 Seereisen wurden eine Vielzahl von chemischen, biologischen und physikalischen Parametern innerhalb des Oberflächenwassers sowie zwischen der marinen atmosphärischen Grenzschicht und der Stratosphäre mit unterschiedlichen Geräten in unterschiedlicher Häufigkeit erfolgreich untersucht. Daten und Proben wurden unter Verwendung verschiedener analytischer Instrumente und Probenentnahmeverrichtungen erhalten (Tabelle 1). Dreistündig wurden Oberflächenwasserproben (94/ SO234-2, 118/ SO235), im hydrographischen Schacht des Schiffes mittels kontinuierlicher Pumpen, sowie Luftproben auf dem Peildeck gewonnen. Tiefenprofile wurden an ausgewählten Standorten (12/ SO234-2, 22/ SO235) durchgeführt, um die vertikale hydrographische und biogeochemische Struktur der Wassersäule, sowie Spurengasprofile zu untersuchen. Halogenkohlenwasserstoffe, sauerstoffhaltige Spurengase und Dimethylsulfid aus Meerwasser- und Luft wurden direkt an Bord unter Verwendung von sechs verschiedenen Gaschromatographie- und Massenspektrometriesystemen analysiert. Kohlendioxid und Sauerstoff wurden in der Deckschicht unmittelbar mit Sensoren gemessen. Außerdem wurden die Treibhausgase N_2O , CH_4 und CO_2 kontinuierlich im Oberflächenwasser mittels Infrarot- und „off-axis-ICOS“-Geräten gemessen. Zur Validierung wurden Wasserproben abgefüllt und mittels Gaschromatographie

nach der Seereise analysiert. Sauerstoff wurde an Bord direkt nach dem Winkler-Verfahren und Nährstoffe mittels mikro- und nano-molaren Autoanalytoren gemessen. Die biologische Probennahme enthielt Parameter von organischem Kohlenstoff und Stickstoff sowie DNA, Pigmente, Zellgrößen, die Mengen kleiner Zellen und die Zusammensetzung und Aktivität des Phytoplanktons und Zooplankton. Atmosphärische Profile von Temperatur, Feuchtigkeit und verschiedenen Arten von Spurengasen (z. B. Ozon, Lachgas, Bromoxid) wurden mit optischen Messungen und während des Aufstieges von Forschungsballonen zur Stratosphäre (bis zu 30 km Höhe) hin untersucht. Optische Sensoren und kontinuierliche Instrumente wurden zu Beginn der Seereise installiert (Abbildung 2). Diskrete Luftproben wurden für Partner der "Rosenstiel School of Marine und Atmospheric Sciences" in Miami und der University of East Anglia genommen.



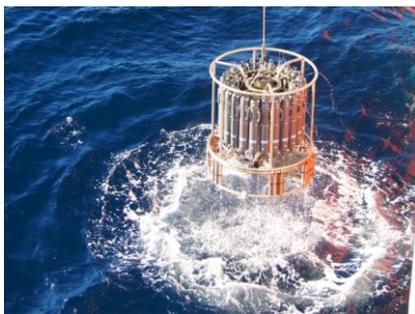
Oberflächenwasserproben
Kontinuierliche Sensoren



Kontinuierliche
Atmosphärenmessungen



Luftprobenahme



Tiefenwasserproben



Ozonsonden



Wetterballone



Massenspektrometer zur Messung von
Halogenkohlenwasserstoffen im Meerwasser



Massenspektrometer zur Messung von
Schwefelverbindungen und Isopren

Abbildung 2: Beispiele der auf SO234-2 und SO235 eingesetzten Methoden und Instrumente.

Tabelle 1: Übersicht über die Methoden und Parameter während SO234-2 und SO235.

Nr.	Gruppe	Instrument/ Methode	Parameter
1	Halogenkohlenwasserstoffe	GC/MS1	Halogenkohlenwasserstoffe
2		GC/ED1	Halogenkohlenwasserstoffe
3		GC/ED2	Halogenkohlenwasserstoffe
4	Spurengase	GC/MS2	DMS
5		Mini-CIMS	DMS/ Isopren / Aceton
6		MICA/CRDS	OCS
7		GC/ECD	N ₂ O
8	Ozeansensoren	Drifter with sensors	O ₂ /CO ₂ /Fluorometer
9		ADCP	Strömungen
10		CTD	Salinität, Temperatur, Tiefe
11	Nährstoffe und Biologie	Autoanalyser	nmolar-Nährstoffe (Oberfläche)
12		Autoanalyser (Seal Quattro)	µmolar- Nährstoffe (Tiefenprofile)
13		Zellzahlen	Durchflusszytometrie
14		HPLC	Pigmente
15		Sequenzierung	RNA
16		TOC-Analyzer	DOC/TDN
17		MS	¹⁵ N
18		Röntgenfluoreszenz	Halogeniertes POC
19		Adsorbierbare organische Halogene	Halogeniertes DOC
20		Ionenchromatographie	I ⁻ /IO ₃ ⁻
21		Mikroskopie	Phytoplanktongemeinschaft
22		Objektträger	TEP/CSP
23		Photometrie	PAB
24		LWCC	CDOM
25		Winkler Titration	Sauerstoff
26		Lichtsensor	Strahlung
27		FRRF	Planktonphysiologie
28	Eddykovarianz Flussmessungen	APCIMS	DMS, Aceton, Isopren
29		Licor	CO ₂ / Wasserdampf
30		Campbell Ultraschall Anemometer	3D-Windgeschwindigkeit und Richtung (2x)/ T-Fluss
31		IMU	Bewegungssensor (pitch and roll)
32		GPS/ Kompass	Geographische Breite/Länge/ Geschwindigkeit über Grund
33	Radiosondierung	Radiosonden	Temperatur, Feuchte, Wind
34		Ozonsonden	Ozon
35		Disdrometer	Regen/ Tropfengröße
36		RAMSES	Strahlung
37		Wetterstation	Temperatur, Feuchte, Regen, Strahlung

Nr.	Gruppe	Instrument/ Methode	Parameter
38	Luftprobennahme	Denuder	Iodide
39		Kanisterproben (MS)	Lang- und kurzlebige Spurengase
40		MAX DOAS	BrO/ NOx/ Aldehyde
41		CES-DOAS	IO
42	Treibhausgase	Horiba Ozonmonitor	Ozon
43		OA-ICOS	N ₂ O/CO
44		Li-COR/ Infrarot 6262	CO ₂
45		GC	CH ₄
46	Aerosole	Aeronet/ Microtop	Aerosol Optische Dichte
47		Kaskadenimpaktor	Aerosol An- und Kationen
48	Schiffsdaten (Dship)	Schiffssensoren	u,v, T, P, U
49		Thermosalinograph	Oberflächensalinität, Temperatur

Eine Vielzahl der Parameter wurde mittlerweile ausgewertet, die Daten sind in die Datenbank OASIS (Kiel Ocean Science Information System for Expeditions, Numeric Models, Experiments...) am GEOMAR überführt (<https://portal.geomar.de/group/oasis>) und stehen der wissenschaftlichen Gemeinschaft für die Nutzung zur Verfügung. Dort findet sich auch eine Übersicht über alle gemessenen Parameter sowie die beiden Fahrtberichte von SO234-2 und SO235 (Krüger et al., 2014 a/b) und der Indian Ocean Bubble Report über die OASIS Fahrt (Krüger et al., 2015). Auswerteergebnisse wurden beim SONNE Statusseminar 2015 präsentiert, sowie auf vielen internationalen Konferenzen im In- und Ausland. Die neuen Einsichten in das Zusammenspiel von Ozean und Atmosphäre aus dem tropischen Westindischen Ozean wurde in sechs begutachteten wissenschaftlichen Zeitschriften publiziert, zwei weitere sind unter Begutachtung und weitere sind in Vorbereitung.

I.4. Wissenschaftlicher Stand an den angeknüpft wurde

Es ist bekannt, dass natürlich emittierte Halogen- und Schwefelverbindungen eine wichtige Rolle für die Zusammensetzung, die Chemie und die Strahlungsbilanz der Atmosphäre (Tropo- und Stratosphäre) spielen. Die sehr kurzlebigen (atmosphärische Lebensdauer unter 0,5 Jahre) brom- und schwefelhaltigen Verbindungen aus dem Ozean, die in der Stratosphäre durch ihre Auswirkungen auf die Ozonchemie von Interesse sind, tragen wesentlich zum stratosphärischen Ozonabbau bei. Chemische Transportmodellstudien reproduzieren den erhöhten Ozonverlust in der nördlichen Hemisphäre nur unter Berücksichtigung von zusätzlichem Brom aus ozeanischen VSLS und erhöhtem stratosphärischen Aerosol, was lokal zu mehr als 20% (10-40%) des Ozonverlustes beitragen kann. Dabei ist unklar woher, wo und in welchen Mengen die ozeanischen VSLS in die Stratosphäre gelangen. Während der Beitrag von Chlor in der Stratosphäre von anthropogenen Verbindungen dominiert wird, wird ca. ein Viertel des Broms und ein Großteil des Schwefels durch natürliche Verbindungen mit ozeanischen und vulkanischen Quellen eingetragen (Hossaini et al., 2016; Sheng et al., 2015). Die Bedeutung der Schwefelverbindungen bezieht sich auf ihre Rolle als Vorläufer für troposphärisches und stratosphärisches Aerosol. Seit 2000 wurde eine Zunahme des stratosphärischen Aerosolhintergrundniveaus beobachtet, wobei der genaue Ursprung dieser Erhöhung noch unklar ist und vermutlich den moderaten Vulkanausbrüchen in diesem Zeitraum zuzuschreiben ist (Hofman et al., 2009, Solomon et al., 2011). Die tropischen Ozeane sind eine bekannte Quelle für reaktive Halogen- und Schwefelverbindungen in Form von kurzlebigen bromierten und schwefelhaltigen

Verbindungen, wie z.B. Bromoform (CHBr_3), Dibrommethan (CH_2Br_2), Methyljodid (CH_3I), Dimethylsulfid (DMS) und OCS (Carbonylsulfid). Erhöhte atmosphärische Konzentrationen über den Ozeanen sind auf ozeanische Übersättigungen der Verbindungen und ihre photochemische und biologische Produktion zurückzuführen. Der intensive vertikale Transport der tropischen Atmosphäre impliziert, dass die ozeanischen Quellen erhebliche Mengen an Halogenen und Schwefel in die obere Troposphäre/ untere Stratosphäre liefern, wo sie zum beobachteten Halogengehalt beitragen. Die ozeanischen VSLs-Flüsse können jedoch sehr starke lokale Variationen zeigen, die eine Quantifizierung ihres Beitrags zum stratosphärischen Budget erschweren. Der Indische Ozean wurde in verschiedenen Klimatologie- und Modellstudien (Ziska et al., 2013, Liang et al., 2014) als eine potentiell bedeutende Quelle halogenierter und schwefelhaltiger Verbindungen für die Troposphäre und Stratosphäre beschrieben. Der subtropische und tropische Indische Ozean ist eine weitgehend nicht charakterisierte Region für die ozeanischen Verbindungen und ein projizierter Hotspot für ihre Emissionen und Transportwege in die Stratosphäre während Südwesten-Monsun. Bisher existierten für die halogenierten VSLs kaum und für die schwefelhaltigen VSLs sehr wenige Messungen aus dieser Region. Die asiatische Monsunzirkulation stellt einen effektiven Weg dar um Luftmassen aus der atmosphärischen Grenzschicht bis in die Stratosphäre einzutragen (Chen et al., 2012). Während des Südwestmonsun (JJA) werden die bodennahen Luftmassen über dem Westindischen Ozean Richtung Indien und den Golf von Bengalen transportiert, wo sie in den Einfluss starker Konvektion und effektiven Transport durch die Tropische Tropopausenschicht (Englisch: tropical tropopause layer, TTL) in die Stratosphäre gelangen. Die derzeitigen Auswirkungen der natürlichen Ozon abbauenden Stoffe sind noch ungewiss und künftige Änderungen in den Mechanismen, die ihre Emissionen an die Atmosphäre, ihren Transport und ihre chemische Verarbeitung regulieren, sind weitgehend unbekannt. Daher haben die ozeanischen Emissionen das Potential für Abweichungen in der prognostizierten Entwicklung der stratosphärischen Ozon- und Aerosolschicht in einem sich ändernden Klima zu verursachen, sofern sie nicht besser verstanden werden. Die Rolle der biogenen VSLs Emissionen aus dem tropischen Indischen Ozean und deren Beitrag in die Stratosphäre wurde bisher noch nicht untersucht.

I.5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen (Nationale und internationale Einbindung)

Die Berufung der OASIS Projektinitiatorin Frau Dr. Krüger an die Universität Oslo führte zu einem Wechsel in der Projektleitung und einer Zusammenarbeit mit der Universität Oslo in Norwegen, wo ein Teil der Modellarbeiten durchgeführt wurden. Es bestand außerdem eine Zusammenarbeit mit der Universität Braunschweig (Dr. Harald Biester), worin Vorstudien zur Untersuchung des Zusammenhanges halogener Methanemissionen und hochmolekularen und anorganischer Vorläuferverbindungen durchgeführt wurden. Luftproben wurden von Prof. Dr. Elliot Atlas an der Rosenstiel School of Marine and Atmospheric Sciences (RSMAS, USA), Aerosolzusammensetzungen von Dr. Alex Baker an der University of East Anglia in Norwich, UK und biologischen DNA und RNA-Proben von Dr. Isaac Cheung von der Hong Kong University of Science and Technology untersucht.

II. Eingehende Darstellung

II.1. Verwendung der Zuwendung und das erzielte Ergebnis

Das Projekt OASIS ("Organische sehr kurzlebige Substanzen und ihre Luft-Wasseraustausch vom Indischen Ozean bis zur Stratosphäre") beinhaltet im Wesentlichen die Forschungsfahrten SO234-2 (Durban-Port Louis, 08.-20. Juli 2014) und SO235 (Port Louis - Malé, 23. Juli bis 7. August 2014) des deutschen Forschungsschiffs SONNE, die erfolgreich durchgeführt wurden. Die Durchführung und erste Ergebnisse der Fahrt sind in den beiden Fahrtberichten (SO234-2: http://oceanrep.geomar.de/25859/1/geomar_rep20.pdf und SO235: [geomar_rep21-1.pdf](http://oceanrep.geomar.de/25859/1/geomar_rep21-1.pdf)) zusammengefasst (Krüger et al., 2014a/b). Die SO234-2-Fahrt war primär als Schulungs- und Kapazitätsaufbau-Seereise für Studierende aus Afrika und Deutschland im Rahmen des BMBF SPACES-Programms ("Wissenschaftliche Partnerschaften für die Beurteilung komplexer Erdsystemprozesse") geplant. Die Ausbildung und Forschung umfasste den Luft-See-Gasaustausch zwischen der Atmosphäre und dem Ozean sowie den Transport von Ozean-Spurengasen vom Indischen Ozean zur Stratosphäre im Südwesten Monsun sowie die Bestimmung wichtiger biogeochemischer Parameter. Die SO235-Seereise war als Pilotstudie für anstehende Forschung in IIOE-2 (International Indian Ocean Expedition-2) zum tropischen Westindischen Ozean geplant. Dreiundzwanzig Wissenschaftler aus Deutschland, Österreich, China, Italien, Malaysia, Großbritannien und den USA und ein Beobachter aus Mauritius nahmen daran teil. Die Forschung umfasste die ozeanischen Quellen, den Spurengasaustausch zwischen der Atmosphäre und dem Ozean, und den Transport der Spurengase aus dem Indischen Ozean in die Stratosphäre während des südwestlichen Monsuns.

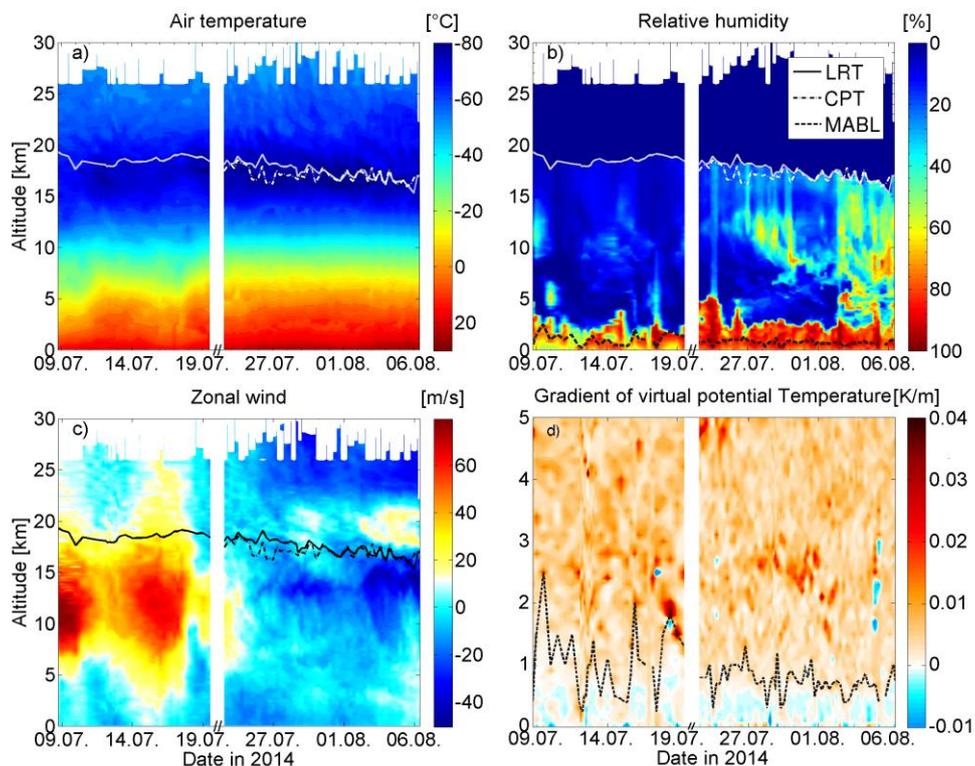


Abbildung 3: Profile der Radiosondenmessungen für Temperatur, relative Feuchte, zonalen Wind und den Gradienten der virtuellen potentiellen Temperatur als Zeitserie. LRT: Temperaturgradient-Tropopause, CPT: Kältepunkt-Tropopause, MABL: Marine atmosphärische Grenzschicht.

Die mit Hilfe von Radio- und Ozonsonden aufgenommenen Profile von Wind, Feuchte, Temperatur (Abbildung 3) und Ozongehalt wurden direkt zum Global Telecommunication System der World Meteorological Organization (WMO) gesendet, um die Dichte der meteorologischen Daten über dem tropischen Westindik zu erhöhen. Diese Messungen fließen in die meteorologischen Reanalysen ein und tragen so zur Verbesserung der beschriebenen Transportmodellierung bei.

Die Radiosonden zeigen eine klare Grenze zwischen der subtropischen und tropischen Zirkulation. Während SO234-2, in den Subtropen, wurde eine hohe relative Luftfeuchte in der marinen atmosphärischen Grenzschicht (MABL) aber sehr niedrige relative Luftfeuchte in der restlichen Troposphäre gemessen. Dies zeigt, dass wenig Konvektion vorhanden war, die Wasserdampf in die freie Troposphäre transportiert. Während des tropischen Teils der Fahrt (SO235) existierte eine sogenannte Passatwindinversion in einer Höhe von 2.5 km zwischen dem 24. Juli und 4. August 2014. Diese Temperaturinversion stimmt mit der Obergrenze einer ozeannahen feuchten Luftschicht überein (Abbildung 3b), was eine Unterdrückung von Austausch durch diese Schicht andeutet. Nahe dem Äquator haben wir erhöhte relative Luftfeuchte in der mittleren und oberen Troposphäre gemessen, was auf erhöhte konvektive Aktivität hindeutet.

Während der Seereisen wurden vier atmosphärische Transportregime: Westwindregion, Übergangsbereich, die indische Monsunzirkulation in der Passatwindregion und lokale Konvektion im äquatorialen Bereich durchquert (Abbildung 4), wobei besonders hohe Windgeschwindigkeiten in der Passatregion auftraten.

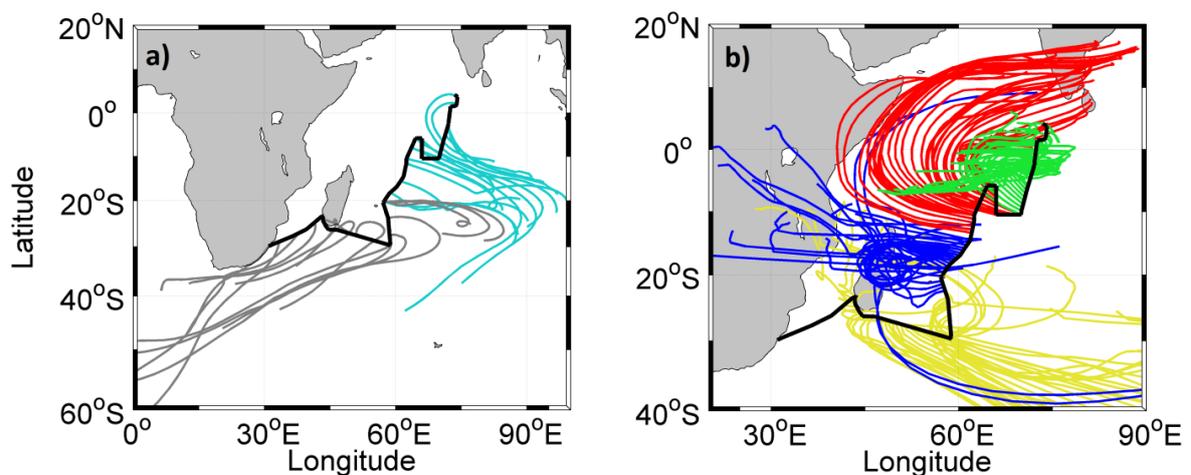


Abbildung 4: a) Flexpart fünf-Tage-Rückwärtstrajektorien. Der Südliche Ozean (grau) und der offene Indische Ozean (türkis) sind Quellengebiete für Luft, die während der Fahrt gemessen wurde. b) Flexpart zehntägige Vorwärtstrajektorien sind nach ihren Transport-Regimen gefärbt: Westwindregion (gelb), Übergang (blau), Monsunzirkulation (rot), lokale Konvektion (grün) (Fiehn et al., 2017a).

Rückwärtstrajektorien zeigen, dass die Luftmassen während SO234-2 aus dem südlichen Ozean und die von SO235 aus dem tropischen Indischen Ozean stammen. Die marine atmosphärische Grenzschicht lag im Mittel bei 700 m Höhe. Es wurden verschiedene biogeochemische Regionen des subtropischen und tropischen Indischen Ozeans, inklusive küstennaher Regime und das Auftriebsgebiet „Seychellen Dom“ im zentralen Indischen Ozean zwischen 10°S und 5°S durchquert, die unterschiedliche Strömungen und Wassermassen aufweisen (Abbildungen 5 und 6).

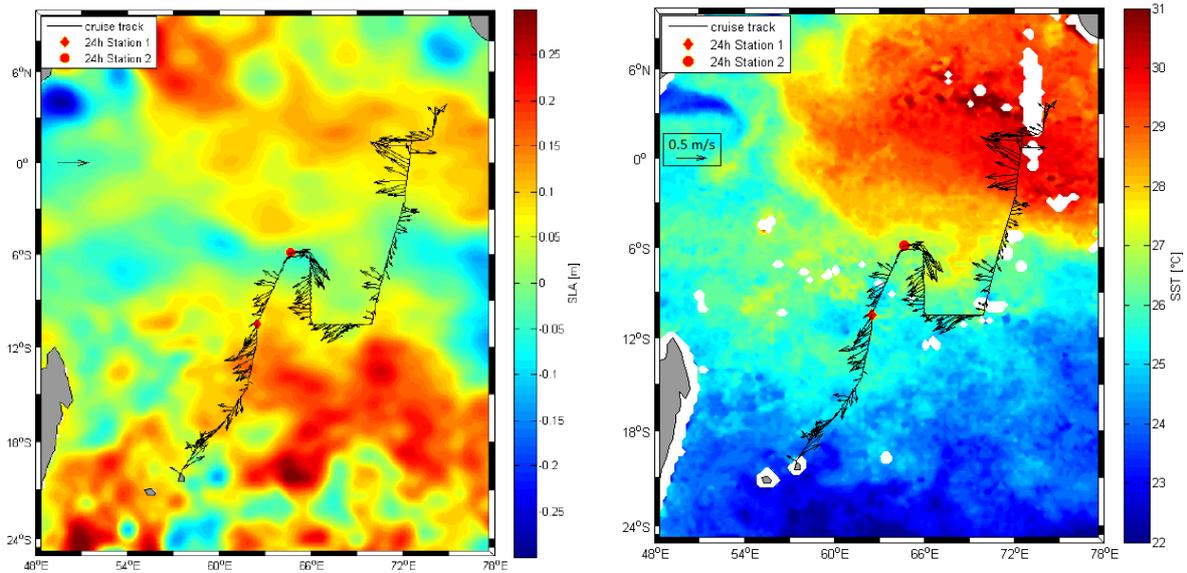


Abbildung 5: Oberflächenanomalie des Meeresspiegels, Oberflächentemperatur und –strömungen während SO235.

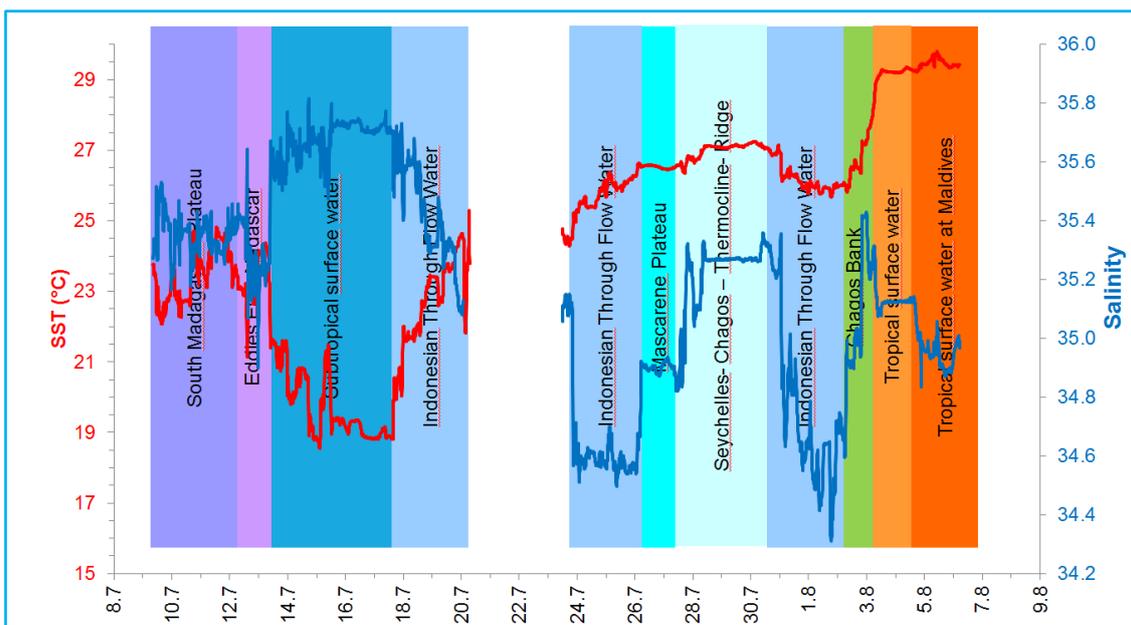


Abbildung 6: Oberflächenwassermassen und Regionen, Oberflächentemperatur und Salinität entlang des Fahrtverlaufes von SO234-2 und SO235 (08.07. bis 07.08.2014).

Erhöhte Chlorophyll a Gehalte wurden südlich von Madagaskar und zwischen 5° und 10°S identifiziert (Abbildung 7). Mit einer Kombination von Pigmentanalyse durch Flüssigchromatographie (HPLC), Repetitionsraten Fluorometrie (FRRf) und Satelliten-Fernerkundungstechniken wurde die Gemeinschaftsstruktur und der physiologische Zustand von Phytoplankton im Indischen Ozean analysiert. Die Phytoplanktonbiomasse war bei der Seereise niedriger als in anderen Jahren, am höchsten in der euphotischen Tiefe (~ 60-80 m) und niedrig an der Oberfläche (max. 0,6 mg / m³). Dominiert wurde die Phytoplanktongemeinschaft von Prochlorophyten (auch an niedriges Licht angepasst), gefolgt von Phaeocystis-Typ-Haptophyten und weiteren Cyanobakterien.

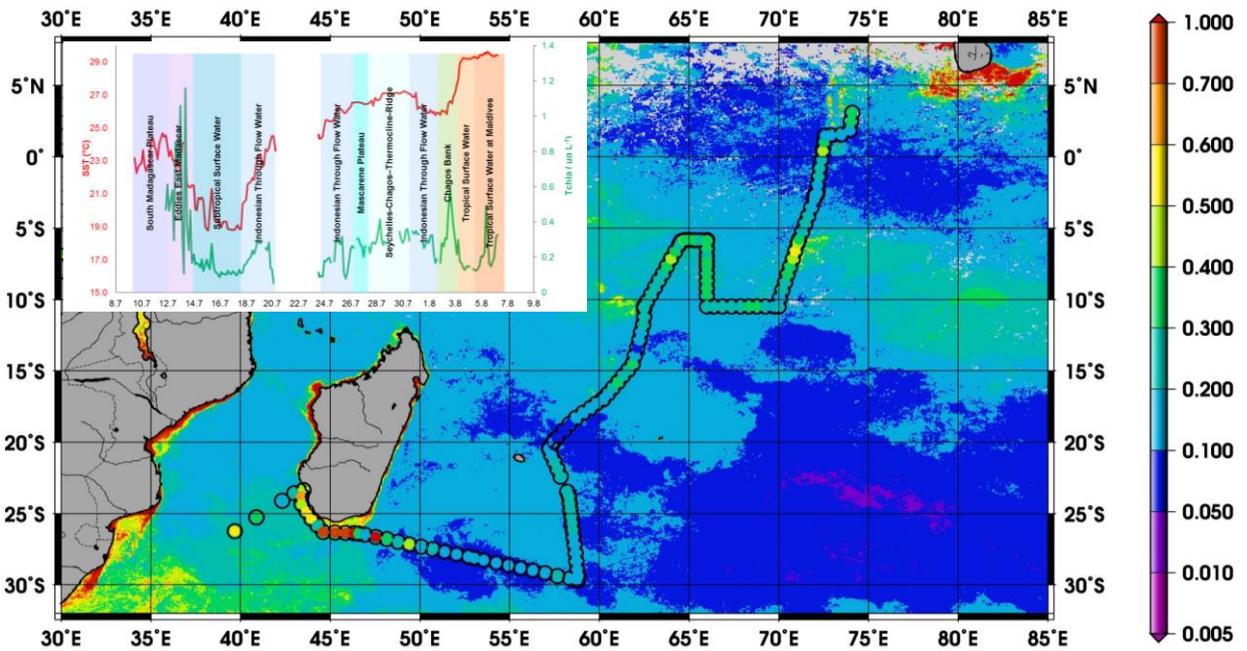


Abbildung 7: Gemessenes Chla (mg/m^3) während SO234-2 und SO235 und MODIS-Aqua Chl-a Satellit Messungen (7. Juli bis 9. August 2014). Kleines Bild: Oberflächentemperatur und Chla entlang der Fahrroute (Datum).

Luft- und Wassermessungen des Dimethylsulfid korrelieren miteinander (Abbildung 8) und hohe ozeanische und atmosphärische DMS Konzentrationen von 200-300 ppt nahe des Mascarene Plateaus (10° - 7° S) gemessen.

Wir führten direkte DMS Flussmessungen mit der Eddy Kovarianz Technik durch. Diese Messungen bestätigten die Vorhersagen der DMS Klimatologie, dass dieser Teil des Meeres eine große Schwefelquelle für die Atmosphäre darstellt ($8.4 \text{ mmol m}^{-2}\text{d}^{-1}$). Jedoch, ausgehend von einer geringen Messabdeckung, spiegelt die Klimatologie die Messwerte der wissenschaftlichen Fahrt nicht hinreichend wieder (siehe Abbildung 9). Da sich hier eine signifikante Schwefelquelle befindet werden mehr Messungen sowohl über eine größere Fläche als auch über längere Zeiträume benötigt.

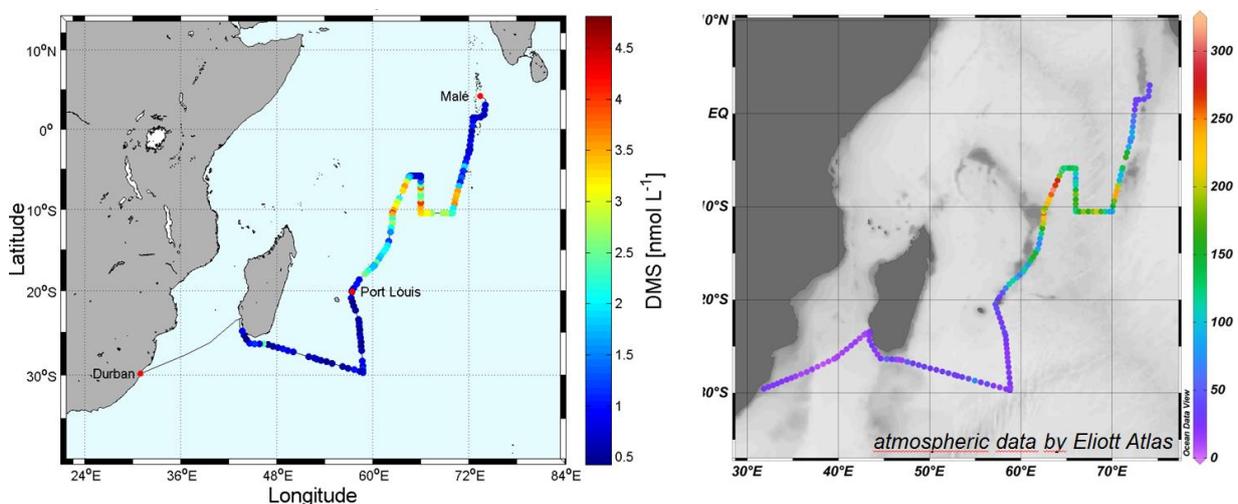


Abbildung 8: Dimethylsulfid (DMS) in Oberflächenwasser und Luft während SO234-2 und SO235.

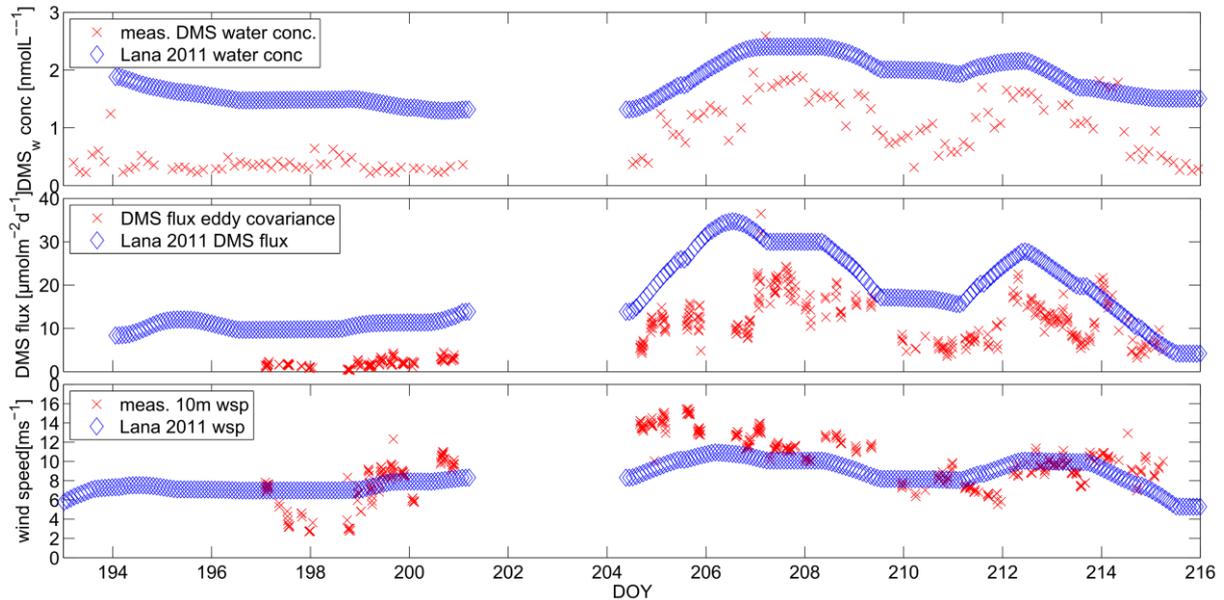


Abbildung 9: Zeitserie entlang der Fahrtroute von SO234-2 und SO235. Die X- Achse ist der Tag des Jahres 2014. Rechtecke markieren die interpolierten Daten der Lana –Klimatologie 2010. Kreuze sind die gemessenen Daten SO234-2/235. Die obere Reihe zeigt den DMS- Fluss, die mittlere Reihe zeigt die Oberflächenwasserkonzentrationen und die untere Reihe zeigt die Windgeschwindigkeit.

Die direkten Flussmessungen wurden mit Vor- und Rückwärtstrajektorien aus dem Programm Flexpart kombiniert, um den Emissionen zeitlich und räumlich zu folgen. Die Emissionen zeigen signifikante Korrelationen (0.42 to 0.62) mit Aerosol-Fernerkundungsdaten von MODIS-TERRA und Suomi-NPP. Die maximalen Korrelationen sind signifikant und zeigen einen regionalen Einfluss der Emissionen zu den Aerosol-Fernerkundungsdaten. (Zavarsky et al., 2017 eingereicht).

Die kontinuierlichen Spurengasmessungen in der Atmosphäre zeigten sehr niedrige Brom und Iodoxid- Konzentrationen (BrO und IO), wobei der Verschmutzungsindikator Stickstoffdioxid (NO_2) erhöhte Werte in der Nähe von Schiffsrouten aufwies.

Die ozeanischen Emissionen von CHBr_3 , CH_2Br_2 und Methyljodid (CH_3I) waren wegen der hohen Konzentrationsgradienten, bedingt durch niedrige atmosphärische Mischungsverhältnisse und verhältnismäßig hohe Wasserkonzentrationen, und den starken Windgeschwindigkeiten, hoch. Die atmosphärischen Spurengasverhältnisse waren generell eher niedrig und entsprechen denen des offenen Ozeans. Erhöhte Halogenkohlenwasserstoffkonzentrationen wurden südlich von Madagaskar und nördlich von 10°S in der Atmosphäre analysiert (Abbildung 10).

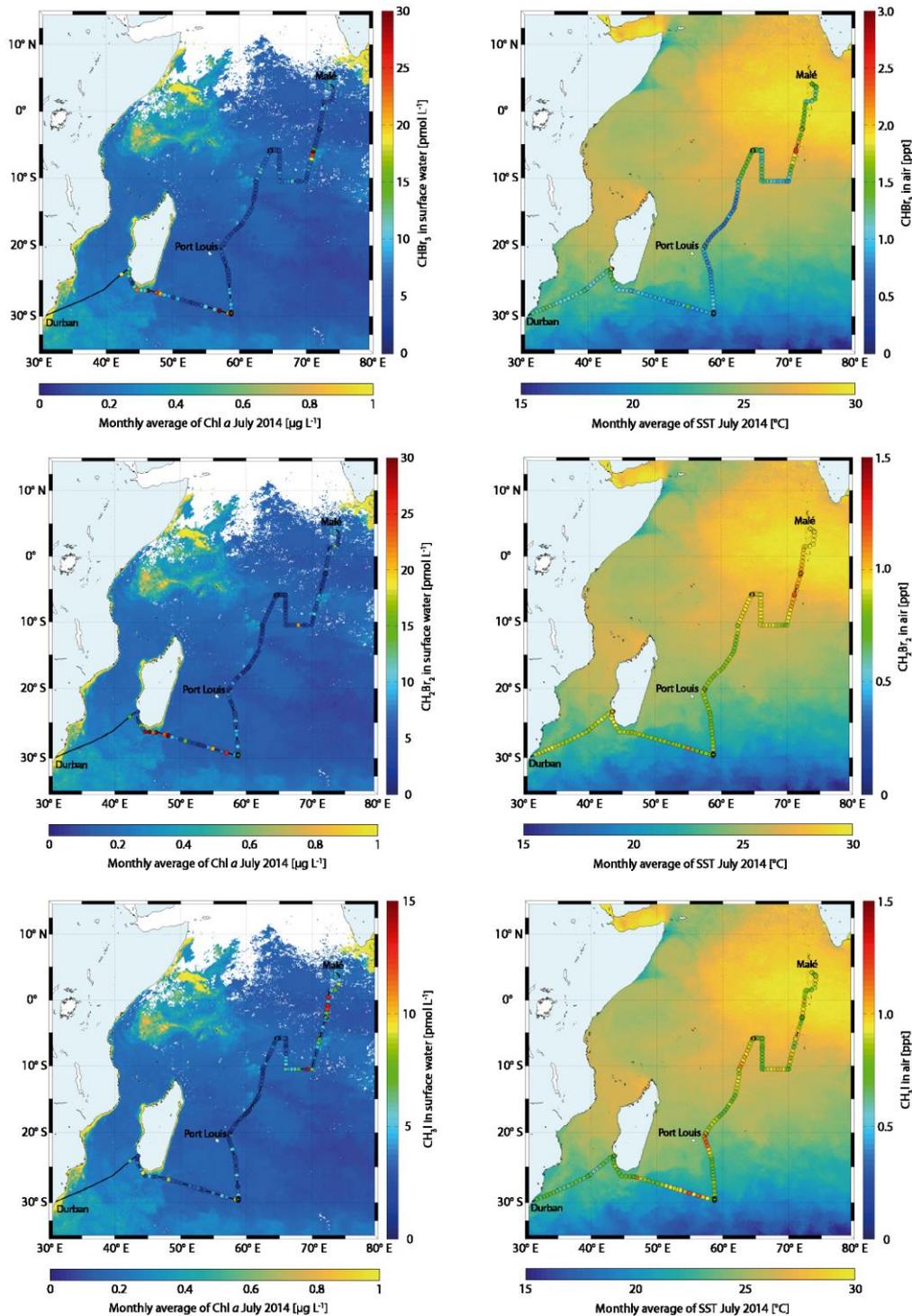


Abbildung 10: Bromoform (CHBr₃), Dibrommethan (CH₂Br₂) und Methylodid (CH₃I) in Oberflächenwasser und Luft während SO234-2 und SO235.

Im Ozean wurden hohe Bromkohlenwasserstoffkonzentrationen nahe der Banc de l'Etoile südlich von Madagaskar und besonders im Vergleich zu anderen sub-tropischen, tropischen Regionen erhöhte Dibrommethankonzentrationen (CH₂Br₂) gemessen. Erhöhte Konzentrationen von Bromoform wurden in dem Auftriebsband zwischen 5° und 10° S (Seychellen Dom, Seychelles-Chagos-Thermocline-Ridge) beobachtet, wobei die Konzentrationen vergleichbar mit denen der Atlantischen Auftriebsgebieten waren (Hepach et al., 2014, 2015). Während in dem Auftriebsgebiet die höchsten Konzentrationen an der Oberfläche zu finden waren, zeigten die Tiefenprofile in den anderen

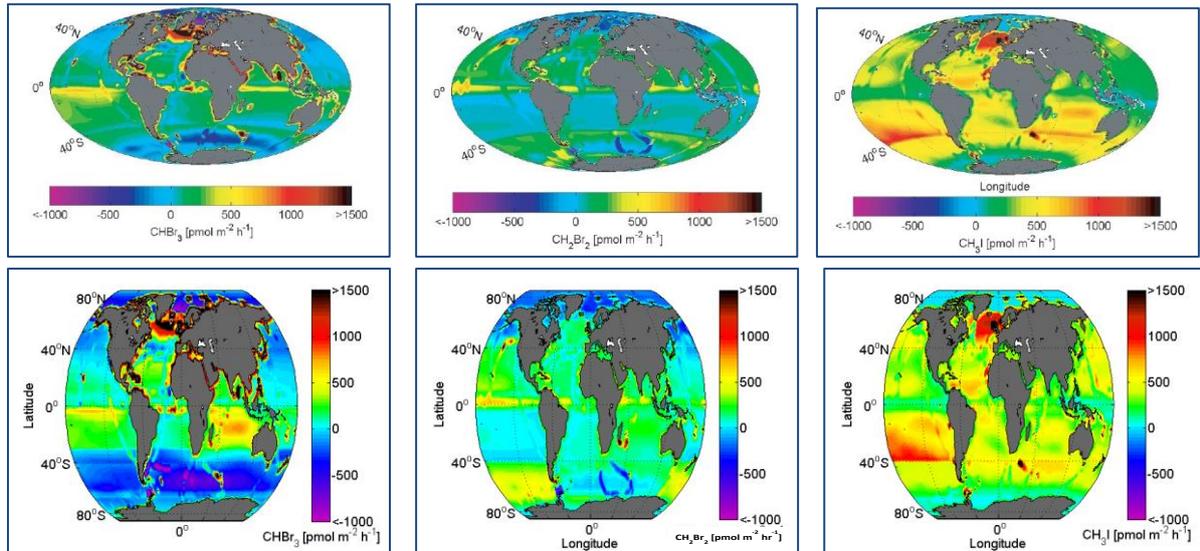


Abbildung 11: Aktualisierte globale Emissionsklimatologien der Spurengase Bromoform (CHBr_3), Dibrommethan (CH_2Br_2) und Methyljodid (CH_3I), die für CHBr_3 und CH_2Br_2 : Oben Ziska et al (2013) unten aktualisiert Karten.

Regionen des während der Seereisen durchquerten Indischen Ozeans oft Halogenkohlenwasserstoffmaxima im Chl a Maximum.

Die Fahrtmessungen der Halogenkohlenwasserstoffe, die die ersten Daten für Bromoform (CHBr_3) und Dibromomethan (CH_2Br_2) aus dem offenen Westindischen Ozean darstellen, sind in eine Aktualisierung der klimatologischen Emissionskarten von Ziska et al. (2013) eingeflossen, die am GEOMAR archiviert wurden (Abbildung 11). Im Gegensatz zu Ziska et al. (2013) zeigen die aktualisierten Halogenkohlenwasserstoffklimatologien höhere Emissionen der Spurengase im tropischen Indischen Ozean als sie vorher per Extrapolation vorhandener Messdaten aus anderen Ozeanen berechnet wurde. Dieses OASIS Ergebnis stellt eine wichtige Grundlage für weiterführende Studien zum Indischen Ozean dar, u.a. für geplante Fahrten in den östlichen Indischen Ozean (Bange, RV Sonne 2019) und für die globale Modellierung des VSLS–Halogen Spurengashaushaltes.

Mit den in Oberflächenwasser und der marinen Atmosphäre gemessenen Konzentrationen von Bromoform (CHBr_3), Dibrommethan (CH_2Br_2) und Methyljodid (CH_3I), wurden die Emissionsstärken der Verbindungen aus dem Meerwasser berechnet. Mit dem Lagrangeschen Transportmodell Flexpart, angetrieben mit ERA-Interim meteorologischen Feldern, berechneten wir den direkten Beitrag der beobachteten VSLS-Emissionen zum stratosphärischen Halogengehalt während des asiatischen Sommermonsuns. Wir fanden, dass der Westindische Ozean eine starke Quelle für CHBr_3 ($910 \text{ pmol m}^{-2} \text{ hr}^{-1}$) und CH_3I ($460 \text{ pmol m}^{-2} \text{ hr}^{-1}$) ist und eine sehr starke Quelle für CH_2Br_2 ($930 \text{ pmol m}^{-2} \text{ hr}^{-1}$). Der atmosphärische Transport von der tropischen Westindischen Ozeanoberfläche zur Stratosphäre erfolgt über zwei Hauptwege. Auf sehr kurzen Zeitskalen, besonders relevant für die kurzlebige Verbindung CH_3I (3,5 Tage Lebensdauer), hebt die direkte Konvektion über dem Indischen Ozean Luftmassen und VSLS aus der Grenzschicht in Richtung Tropopause. Auf einer längeren Zeitskala transportiert die asiatische Sommermonsunzirkulation ozeanische VSLS in Richtung Indien und der Bucht von Bengalen, wo sie mit der Monsunkonvektion angehoben und im südöstlichen Teil der asiatischen Monsun-Antizyklone in die Stratosphäre transportiert werden. Dieser Transportweg ist für die langlebigen bromierten Verbindungen (17 und 150 Tage Lebensdauer für CHBr_3 und CH_2Br_2) von größerer Bedeutung. 2 bis 3% der ozeanischen „Very Short Lived Halocarbon“ Emissionen aus dem

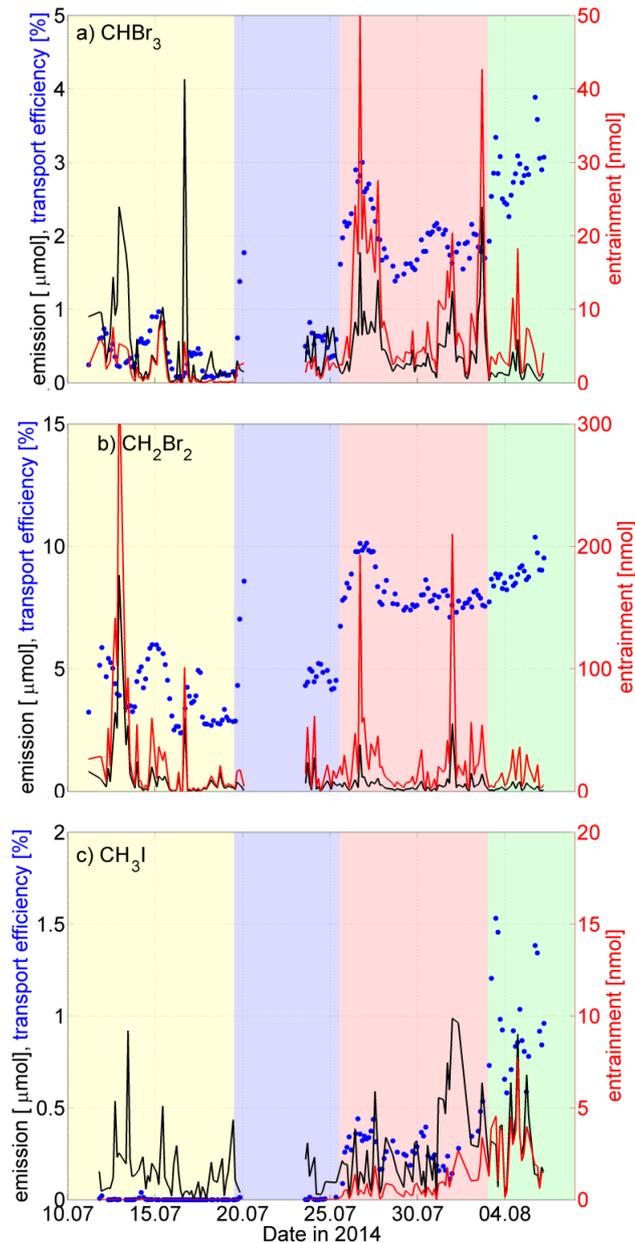


Abbildung 12: Ozeanemissionen von CHBr_3 , CH_2Br_2 , und CH_3I und ihr stratosphärischer Eintrag (bei 17 km Höhe), sowie die Effizienz des atmosphärischen Transportes (%) während SO234-2 und SO235. Die Schattierungen heben die Transportregime hervor: Westwindregion (gelb), Übergang (blau), Monsunzirkulation (rot), lokale Konvektion (grün) (Fiehn et al., 2017a).

zentralen Indischen Ozean werden in die Stratosphäre transportiert, was jedoch auf Grund der hohen Emissionen einen signifikanten Eintrag in die Stratosphäre ausmacht (Abbildung 12). Es wurde weiterhin festgestellt, dass der Transport und Eintrag vom West Indischen Ozean in die Stratosphäre einem saisonalen Zyklus folgt und während des Nordhemisphären-Frühlings am stärksten und im Sommer geringer ausgeprägt ist (Abbildung 13).

Der CHBr_3 und CH_3I - Eintrag vom Westindischen Ozean zur Stratosphäre während des asiatischen Sommermonsuns ist kleiner als von vorherigen Seereisen im tropischen Westpazifik während des borealen Herbstes / frühen Winters, aber höher als vom tropischen Atlantik während des borealen Sommers (Fiehn et al., 2017a). Im Gegensatz dazu war der berechnete

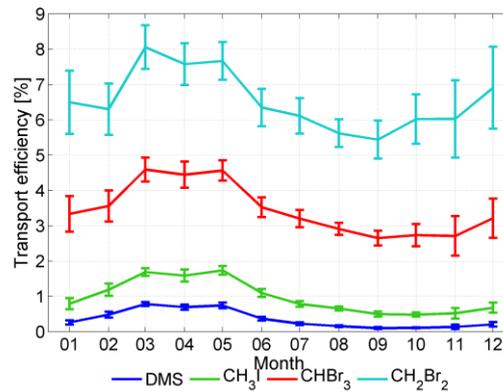


Abbildung 13: Saisonaler Verlauf des stratosphärischen Eintrages von der Oberfläche des westlichen Indischen Ozeans, für Tracer unterschiedlicher atmosphärischer Lebenszeiten innerhalb von 1(DMS), 3,5(CH₃I), 17 (CHBr₃) und 150 Tagen (CH₂Br₂) Lebenszeit (Fiehn et al., 2017b).

CH₂Br₂-Eintrag vom Indischen Ozean, aufgrund der hohen Emissionen während der Seereise, sehr hoch. Darüber hinaus wurden die in-situ-Berechnungen mit der interannualen Variabilität des Transports von einem größeren Gebiet der Oberfläche des Westindischen Ozeans bis zur Stratosphäre für die Juli der Jahre 2000-2015 verglichen (Abbildung 14). Die 16 Jahre umfassende Juli-Zeitreihe des stratosphärischen Eintrages zeigt die höchste interannualen Variabilität für das kurzlebige CH₃I und die niedrigste für das langlebige CH₂Br₂. Während dieser Zeit wurde eine geringe Zunahme des VLSL-Eintrages vom Westindischen Ozean durch den asiatischen Monsun zur Stratosphäre festgestellt (Abbildung 14). Insgesamt bestätigt dieses Projekt, dass der subtropische und tropische Westindische Ozean eine wichtige Quellregion von halogeniertem VLSL, insbesondere CH₂Br₂, für die Troposphäre und Stratosphäre während des asiatischen Sommermonsuns ist. Die zwischenjährlichen Schwankungen des Transportes, die im Nordhemisphären-Winter stärker sind als im Sommer, sind geringer als die saisonalen Unterschiede (Abbildung 13,14). Alle Jahreszeiten zeigen eine Transportzunahme über die letzten 15 Jahre in dieser Region. Eine leicht negative Korrelation des Transportes mit dem Indian Monsoon Index während des

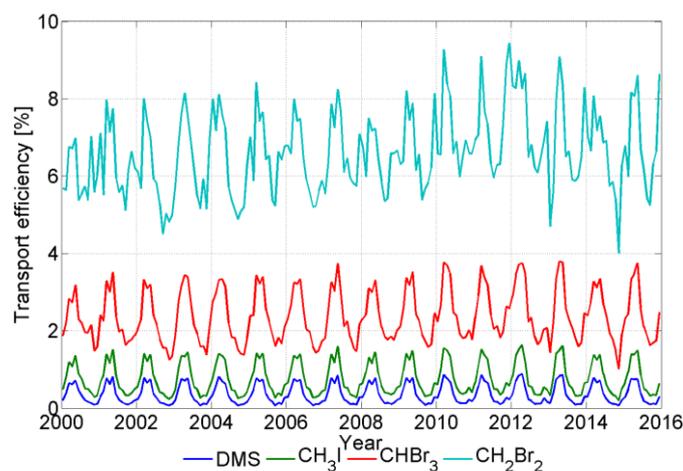


Abbildung 14: Zeitserien des VLSL Eintrages, der im westlichen Indischen Ozean gestarteten Trajektorien, in die Stratosphäre (17 km) innerhalb von 1 (DMS), 5 (CH₃I), 30 (CHBr₃) und 90 (CH₂Br₂) Tagen Lebenszeit (Fiehn et al., 2017b).

Nord-Sommers zeigt, dass ein starker Sommermonsun zu einem geringeren Eintrag reaktiver Spurengase aus dem Westindischen Ozean in die Stratosphäre führt. Während des Nordhemisphären-Winters sind Transport und Monsunstärke positiv korreliert. Unsere OASIS-Ergebnisse zeigen, dass Änderungen in der asiatischen Monsunzirkulation einen direkten Einfluss auf den stratosphärischen Halogengehalt und damit auf die Ozonschicht haben. Möglicherweise hat die Abnahme der Monsunstärke in den letzten Jahren besonders während des Nordhemisphären-Sommers zu mehr Eintrag der marinen Spurengase in die Stratosphäre geführt (Fiehn et al., 2017a).

Der Eintrag von marinem Schwefel aus dem zentralen Westindischen Ozean in die Stratosphäre wurde anhand von einem künstlichen DMS Tracer mit einer Lebenszeit von einem Tag mit dem Transportmodell Flexpart bestimmt. Der Transport weist wie bei den sehr kurzlebigen Halogenverbindungen einen Jahresgang mit einem Maximum um 0.8% Eintrag im Frühjahr auf (Abbildung 13). Im borealen Sommer und Herbst ist der stratosphärische Eintrag sehr gering, da das DMS schneller abgebaut wird als der Transportprozess über den Südwestmonsun dauert. Die saisonalen Schwankungen sind stärker als die interannualen Unterschiede (Abbildung 14).

Die Hauptquellregionen der durch die Asiatische Antizyklone (Box in Abbildung 15) in die Stratosphäre eingetragenen Luftmassen, die ebenfalls bestimmt wurden, haben ihren Ursprung jeweils zur Hälfte in der terrestrischen (52%, rot) und der marinen (48%, blau) Grenzschicht (Abbildung 15). Dabei können die Bucht von Bengalen, neben dem tropischen Westpazifik, für den Eintrag der Halogene eine noch größere Rolle im Sommermonsun spielen, als die Emissionen aus dem Westindischen Ozean, da die einzige Messung halogenierter kurzlebiger Spurengase in der Bucht von Bengalen von Yamamoto et al. (2001) sehr starke Quellen erwarten lässt.

Zu Beginn des OASIS-Projektes gab es nur sehr wenige explizite Beobachtungsdaten von OCS-Konzentrationen und Emissionen im tropischen Ozean (Mihalopoulos et al., 1992). Die kontinuierlich gemessenen Carbonylsulfid (OCS)-Daten von SO235 weisen einen ausgeprägten Tagesgang auf und zeigten, dass entgegen den bisherigen Annahmen der tropische Indische Ozean eine Netto-Senke für atmosphärisches OCS ist (Lennartz et al., 2017). Die an Bord durchgeführten Messungen von

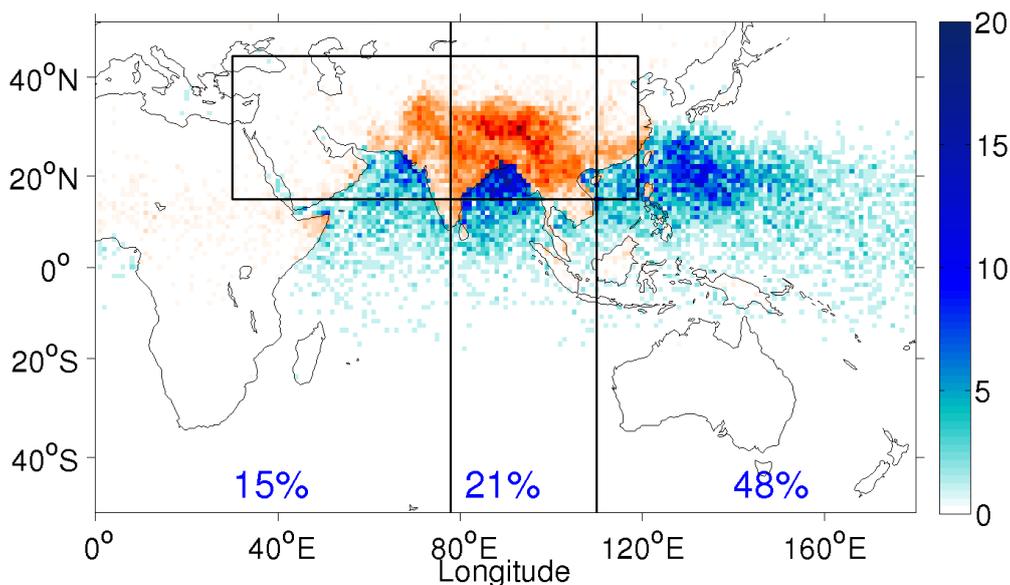


Abbildung 15: Hauptquellregionen (in %) der durch die Asiatische Antizyklone (Box) in die Stratosphäre eingetragenen Luftmassen.

farbgebenden, gelösten organischen Stoffen (Englisch abgekürzt CDOM), UV-Strahlung, Meeresoberflächentemperatur, Salzgehalt und meteorologischen Daten wurden verwendet, um die beobachteten OCS Konzentrationen mit einem vereinfachten Box-Modell zu simulieren. Dazu wurde ein bestehendes Boxmodell für OCS (von Hobe, 2003) verbessert. Als Schlüsselfaktoren für die Produktion bzw. den Abbau von OCS im Oberflächenwasser konnten UV-Strahlung, CDOM und Wassertemperatur festgestellt werden. Das Boxmodell wurde besonders hinsichtlich der Berechnung der photochemischen Produktion verbessert und konnte die beobachteten Konzentrationen gut reproduzieren (Abbildung 16). Mit Hilfe des Boxmodells wurden OCS Konzentrationen und Emissionen mit Hilfe von Satellitendaten (Aqua MODIS, NASA) und meteorologischen Reanalysedaten (ERA-Interim, Dee et al., 2011) global simuliert (Abbildung 17) (Lennartz et al., 2017).

Mit Hilfe dieser Emissionsabschätzungen konnte die Fragestellung des aktuell diskutierten atmosphärischen OCS Budgets über die fehlende Quelle im tropischen Ozean adressiert werden. Während atmosphärische Modellinversionen (Kuai et al., 2015) eine zusätzliche Quelle für atmosphärisches OCS im tropischen Ozean vermuten, konnte durch unsere Messungen gezeigt werden, dass es sehr unwahrscheinlich ist, dass direkte ozeanische Emissionen von OCS dafür verantwortlich sind (Lennartz et al., 2017). Zusätzlich konnte mit Hilfe dieser Emissionsabschätzungen die Fragestellung des aktuell diskutierten atmosphärischen OCS Budgets über die fehlende Quelle im tropischen Ozean adressiert werden. Während atmosphärische Modellinversionen (Kuai et al., 2015) eine zusätzliche Quelle für atmosphärisches OCS im tropischen Ozean vermuten, konnte durch unsere OASIS-Messungen gezeigt werden, dass es sehr unwahrscheinlich ist, dass direkte ozeanische Emissionen von OCS dafür verantwortlich sind (Lennartz et al., 2017).

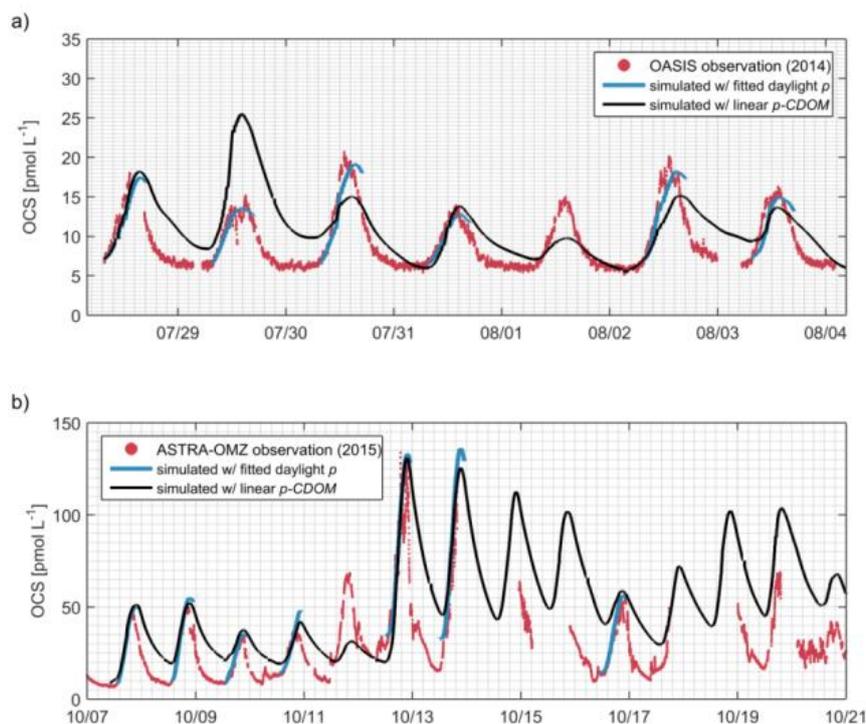


Abbildung 16: Gemessene OCS Konzentrationen (rot) während der Seereisen in den Indischen Ozean (OASIS) (a) und den Westpazifik (ASTRA-OMZ, Oktober 2015) (b), optimierte Parameter zur Photoproduktion (blau) sowie Simulation der Konzentrationen im gesamten Fahrtverlauf (schwarz) (Lennartz et al., 2017).

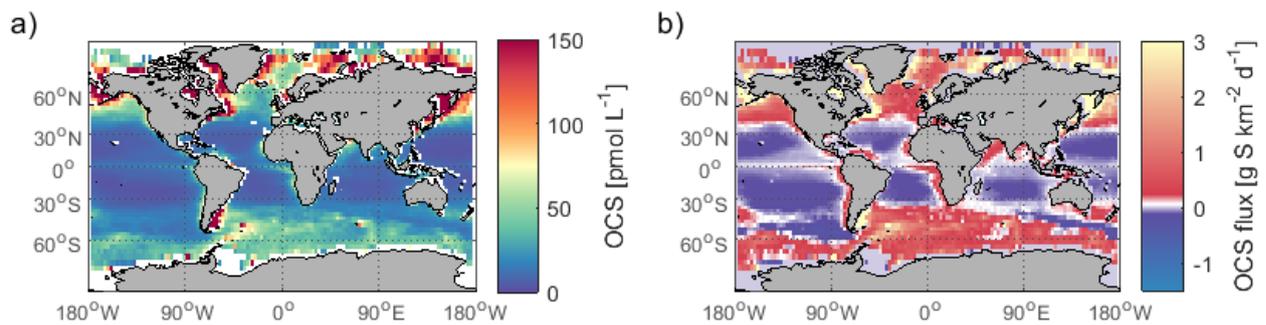


Abbildung 17: Globales Boxmodell zur Modellierung ozeanischer Oberflächenkonzentrationen von Karbonsulfid (OCS, links), sowie daraus errechneter Emissionen in die Atmosphäre (rechts) (Lennartz et al., 2017).

Abschließend konnte gezeigt werden, dass der globale Ozean zwar die dominante Quelle für atmosphärisches OCS ist, die Emissionen aber nicht groß genug sind, um das Budget zu schließen (Lennartz et al., 2017). Besonders in den Tropen, wo die fehlende Quelle von atmosphärischem OCS vermutet wird, deuten weder Messungen noch Modellsimulationen auf deutlich erhöhte Emissionen hin. Diese Bottom-up-Schätzung der ozeanischen Emissionen hat Auswirkungen auf die Verwendung von OCS als Proxy für die globale terrestrische CO_2 -Aufnahme, die derzeit durch die unzureichende Quantifizierung atmosphärischer OCS-Quellen und -Senken beeinträchtigt wird.

Die Isoprenmessungen der Fahrten SO234-2 und SO235 wurden zusammen mit zwei weiteren Feldmessungen aus anderen Ozeangebieten und Satellitendaten verwendet, um globale ozeanische Isoprenemissionen zu modellieren. Es konnte gezeigt werden, dass bei Verwendung von monatlichen Mittelwerten von Chlorophyll a und einer gekoppelten konstanten Produktionsrate die gemessenen ozeanischen Isoprenkonzentrationen um einen mittleren Faktor von 19 ± 12 unterschätzt werden. Das biogeochemische Modell konnte durch die Verwendung von phytoplanktonabhängigen Produktionswerten verbessert werden. Durch die zusätzliche Verringerung der bakteriellen Abbaugeschwindigkeit von Isopren in der Wassersäule ergibt sich nur eine geringe Unterschätzung (Faktor $1,7 \pm 1,2$). Mit Hilfe des verbesserten biogeochemischen Modells wurden globale Isopren-Emissionen von $0,21 \text{ Tg C}$ für 2014 berechnet, die doppelt so hoch sind, wie die Ergebnisse des ursprünglichen Modells. Demnach müssen die ozeanischen Emissionen mindestens eine Größenordnung höher sein, um die gemessenen atmosphärischen Isopren-Mischverhältnisse zu reproduzieren. Diese Ergebnisse deuten darauf hin, dass es mindestens eine fehlende ozeanische Quelle von Isopren und möglicherweise andere unbekannte Faktoren im Ozean oder der Atmosphäre gibt, die die atmosphärischen Werte beeinflussen. Die Diskrepanz zwischen berechneten Flüssen und atmosphärischen Beobachtungen müssen in Einklang gebracht werden, um die Bedeutung des marinen Isoprens als Vorläufer der marinen Grenzschichtpartikelbildung vollständig zu verstehen (Booge et al., 2016).

Weitere OASIS-Publikationen sind eingereicht und in Vorbereitung. Sie beschäftigen sich unter anderem mit der Verteilung und der Ausbreitung von N_2O und Hydroxylamin (NH_2OH) im tropischen Indischen Ozean (Ma et al., in Vorbereitung) sowie mit dem Vergleich der ozeanischen Emissionen und der Quellen der halogenierten Verbindungen während OASIS im Vergleich zu anderen tropischen Regionen (Quack et al., in Vorbereitung). Außerdem wird die CO_2 -Senke im südlichen Teil des

Fahrtgebietes eingehend untersucht und mit historischen Datensätzen verglichen (Steinhoff et al., in Vorbereitung). Die Messungen der OASIS-Fahrten tragen in der aktuellen deutschen „Integrated German Indian Ocean Study“ (IGIOS) - Initiative von Hermann Bange (GEOMAR) und Birgit Gaye (Universität Hamburg) im Indischen Ozean bei (Bange und Gaye, 2016).

Referenzen (* OASIS Publikationen):

Bange, H.B., Gaye B., Towards an “Integrated German Indian Ocean Study (IGIOS)”, The Indian Ocean Bubble 2, Report No. 5, August 2016.

*Booge, D., Marandino, C. A., Schlundt, C., Palmer, P. I., Schlundt, M., Atlas, E. L., Bracher, A., Saltzman, E. S., and Wallace, D. W. R.: Can simple models predict large-scale surface ocean isoprene concentrations?, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 11807-11821, doi:10.5194/acp-16-11807-2016, 2016.

Chen, B., Xu, X., Yang, S., and Zhao, T.: Climatological perspectives of air transport from atmospheric boundary layer to tropopause layer over Asian monsoon regions during boreal summer inferred from Lagrangian approach, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 5827-5839, 2012.

Dee, D. P., Uppala, S. M., Simmons, A. J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M. A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A. C. M., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A. J., Haimberger, L., Healy, S. B., Hersbach, H., Hólm, E. V., Isaksen, L., Kållberg, P., Köhler, M., Matricardi, M., McNally, A. P., Monge-Sanz, B. M., Morcrette, J. J., Park, B. K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavolato, C., Thépaut, J. N., and Vitart, F.: The era-interim reanalysis: Configuration and performance of the data assimilation system, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137, 553-597, 10.1002/qj.828, 2011.

*Fiehn, A., Quack, B., Hepach, H., Fuhlbrügge, S., Tegtmeier, S., Toohey, M., Atlas, E., and Krüger, K.: Delivery of halogenated very short-lived substances from the West Indian Ocean to the stratosphere during Asian summer monsoon, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, doi:10.5194/acp-2017-8, in review, 2017a.

*Fiehn, A., Quack, B., Hepach, H., Marandino, C., Fuhlbrügge, S., Tegtmeier, S., Toohey, M., Atlas, E., and Krüger, K.: Seasonal and interannual variability of transport from the West Indian Ocean to the stratosphere, in preparation for *Atmos. Chem. Phys.*, 2017b.

Hepach, H., Quack, B., Ziska, F., Fuhlbrügge, S., Atlas, E. L., Krüger, K., Peeken, I., Wallace, D. W. R., Drivers of diel and regional variations of halocarbon emissions from the tropical North East Atlantic, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1255-1275, doi:10.5194/acp-14-1255-2014, 2014.

Hepach, H., Quack, B., Raimund, S., Fischer T., Atlas, E., Bracher, A., Halocarbon emissions and sources in the equatorial Atlantic Cold Tongue, *Biogeosciences*, 12 (21), 6369-6387, doi:10.5194/bg-12-6369-2015, 2015.

Hofmann, D., J. Barnes, M. O'Neill, M. Trudeau, and R. Neely, Increase in background stratospheric aerosol observed with lidar at Mauna Loa Observatory and Boulder, Colorado, *Geophysical Research Letters*, 36, 2009.

Hossaini, R., P. K. Patra, A. A. Leeson, G. Krysztofiak, N. L. Abraham, S. J. Andrews, A. T. Archibald, J. Aschmann, E. L. Atlas, D. A. Belikov, H. Bönisch, L. J. Carpenter, S. Dhomse, M. Dorf, A. Engel, W. Feng, S. Fuhlbrügge, P. T. Griffiths, N. R. P. Harris, R. Hommel, T. Keber, K. Krüger, S. T. Lennartz, S. Maksyutov, H. Mantle, G. P. Mills, B. Miller, S. A. Montzka, F. Moore, M. A. Navarro, D. E. Oram, K. Pfeilsticker, J. A. Pyle, B. Quack, A. D. Robinson, E. Saikawa, A. Saiz-Lopez, S. Sala, B.-M. Sinnhuber, S. Taguchi, S. Tegtmeier, R. T. Lidster, C. Wilson, and F. Ziska, A multi-model intercom-parison of halogenated very short-lived substances (TransCom-VSLS): linking

oceanic emissions and tropospheric transport for a reconciled estimate of the stratospheric source gas injection of bromine, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 9163-9187, doi:10.5194/acp-16-9163-2016, 2016.

Kettle, A. J., Rhee, T. S., von Hobe, M., Poulton, A., Aiken, J., and Andreae, M. O.: Assessing the flux of different volatile sulfur gases from the ocean to the atmosphere, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 106, 12193-12209, 10.1029/2000jd900630, 2001.

*Krüger, K., Quack, B. and Marandino, C., eds., *RV SONNE Fahrtbericht / Cruise Report SO234-2, 08.-20.07.2014, Durban, South Africa - Port Louis, Mauritius - SPACES OASIS Indian Ocean*, GEOMAR Report, N. Ser. 020. GEOMAR, Kiel, Germany, 87 pp. DOI 10.3289, 2014a.

*Krüger, K., Quack, B. and Marandino, C., eds., *RV SONNE Fahrtbericht / Cruise Report SO235, 23.07.-07.08.2014, Port Louis, Mauritius to Malé, Maldives* GEOMAR Report, N. Ser. 021. GEOMAR, Kiel, Germany, 65 pp. DOI 10.3289, 2014b.

*Krüger, K., B. Quack and C. Marandino, OASIS-research cruises SO234-2 and SO235 of R/V SONNE in summer 2014 in the tropical Indian Ocean investigating “Organic very short lived substances and their Air-Sea exchange from the Indian Ocean to the Stratosphere” and more biogeochemical and oceanographic parameters, *Indian Ocean Bubble 2*, Report No. 3, PP. 9-10, 2015.

Kuai, L., Worden, J. R., Campbell, J. E., Kulawik, S. S., Li, K.-F., Lee, M., Weidner, R. J., Montzka, S. A., Moore, F. L., Berry, J. A., Baker, I., Denning, A. S., Bian, H., Bowman, K. W., Liu, J., and Yung, Y. L.: Estimate of carbonyl sulfide tropical oceanic surface fluxes using aura tropospheric emission spectrometer observations, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120, 11,012-011,023, 10.1002/2015jd023493, 2015.

Lana, A., Bell, T. G., Simo, R., Vallina, S. M., Ballabrera-Poy, J., Kettle, A. J., Dachs, J., Bopp, L., Saltzman, E. S., Stefels, J., Johnson, J. E., and Liss, P. S.: An updated climatology of surface dimethylsulfide concentrations and emission fluxes in the global ocean, *Global Biogeochemical Cycles*, 25, 2011.

Liang, Q., Atlas, E., Blake, D., Dorf, M., Pfeilsticker, K., and Schauffler, S.: Convective transport of very short lived bromocarbons to the stratosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 5781-5792, 2014.

*Lennartz, S. T., Marandino, C. A., von Hobe, M., Cortes, P., Quack, B., Simo, R., Booge, D., Pozzer, A., Steinhoff, T., Arevalo-Martinez, D. L., Kloss, C., Bracher, A., Röttgers, R., Atlas, E., and Krüger, K.: Direct oceanic emissions unlikely to account for the missing source of atmospheric carbonyl sulfide, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 385-402, doi:10.5194/acp-17-385-2017, 2017.

*Ma, X., Bange, H.W., Eirund, G.K. and Arévalo-Martínez, D.L., Nitrous oxide and hydroxylamine measurements in the Southwest Indian Ocean. *J. Mar. Sys.*, submission in March 2017.

Marandino, C., Tegtmeier, S., Krüger, K., Zindler, C., Atlas, E. L., Moore, F. and Bange, H. W., Dimethylsulphide (DMS) emissions from the West Pacific Ocean: a potential marine source for the stratospheric sulphur layer *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13 (16). pp. 8427-8437. DOI 10.5194/acp-13-8427-2013, 2013

Mihalopoulos, N., Nguyen, B. C., Putaud, J. P., & Belviso, S. (1992). The oceanic source of carbonyl sulfide (COS). *Atmospheric Environment*, 26A(8), 1383-1394.

*Quack, B., Hepach, H., Atlas, E., Krüger, K., Fiehn A., Fuhlbrügge, S., Tegtmeier, S., Distribution and air-sea fluxes of halocarbons in the western Pacific and Indian Ocean, in prep.

Sheng, J.-X., D. K. Weisenstein, B.-P. Luo, E. Rozanov, A. Stenke, J. Anet, H. Bingemer, and T. Peter, Global atmospheric sulfur budget under volcanically quiescent conditions: Aerosol-chemistry-

climate model predictions and validation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120(1), 256-276, 2015.

Solomon, S., J. S. Daniel, R. R. Neely, 3rd, J. P. Vernier, E. G. Dutton, and L. W. Thomason, The persistently variable "background" stratospheric aerosol layer and global climate change, *Science*, 333(6044), 866-870, 2011.

Stemmler, I., Hense, I., Quack, B., Marine sources of bromoform in the global open ocean – global patterns and emissions, *Biogeosciences*, 12, 1967-1981, doi:10.5194/bg-12-1967-2015, 2015.

von Hobe, M.: Photochemical and physical modeling of carbonyl sulfide in the ocean, *Journal of Geophysical Research*, 108, 10.1029/2000jc000712, 2003.

*Zavarsky, A., Booge, D., Fiehn, A., Krüger, K., Atlas, E., and Marandino, C., The influence of air-sea fluxes on atmospheric aerosols during the summer monsoon over the Indian Ocean, submitted to *Scientific Reports* 2017.

Ziska, F., Quack, B., Abrahamsson, K., Archer, S. D., Atlas, E., Bell, T., Butler, J. H., Carpenter, L. J., Jones, C. E., Harris, N. R. P., Hepach, H., Heumann, K. G., Hughes, C., Kuss, J., Krüger, K., Liss, P., Moore, R. M., Orlikowska, A., Raimund, S., Reeves, C. E., Reifenhäuser, W., Robinson, A. D., Schall, C., Tanhua, T., Tegtmeier, S., Turner, S., Wang, L., Wallace, D., Williams, J., Yamamoto, H., Yvon-Lewis, S., and Yokouchi, Y.: Global sea-to-air flux climatology for bromoform, dibromomethane and methyl iodide, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8915-8934, 10.5194/acp-13-8915-2013, 2013.

II.2. Die wichtigsten Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Die Projektmittel wurden für die Reisekosten der fünfzehn deutschen und afrikanischen Studenten, die im Rahmen des BMBF Programms SPACES ("Science Partnerships for the Assessment of Complex Earth System Processes") an SO234, sowie für die dreiundzwanzig Wissenschaftler aus Deutschland, Österreich, China, Italien, Malaysia, Großbritannien und den USA, die an SO235 teilnahmen und die beiden Beobachter aus Mauritius und Madagaskar eingesetzt. Die Containertransporte der Expeditionsausrüstung nach Durban und zurück von Colombo, sowie einige Luftfrachten von Male und der Kühltransport des Probenmaterials zurück nach Kiel, Norwich und Bremerhaven wurden ebenfalls aus den Projektmitteln bestritten. Verbrauchsmaterialien für die Seereisen, wie flüssiger Stickstoff und Gase für die An Bord-Analytik der Spurengase und die Radiosondenaufstiege zur Vermessung der atmosphärischen Struktur, sowie Mieten für Flüssigstickstoffbehälter, die Radiosondengrundstation und Ozonmesseneinheiten gehörten zu den Projektausgaben. Frau Dr. Hepach führte als Postdoktorandin die Messungen der halogenierten Spurengase, die Auswertung des Datensatzes aus Luft und Atmosphäre, sowie die Berechnung des Luftwassergasaustausches der Verbindungen durch. Herr Fuhlbrügge arbeitete Frau Alina Fiehn (Doktorandin in OASIS) mit seinen Programmier- und meteorologischen Kenntnisse, insbesondere über die Bestimmung der marinen Grenzschicht und der Auswertung der Ozonrohdaten, in die Thematik ein. Frau Fiehn verfasste bisher zwei Publikationen zum Thema des Transportes der halogenierten und schwefelhaltigen Spurengase vom west-indischen Ozean bis in die Stratosphäre und wird im Sommer 2017 ihre Promotion abschließen. Die Mittel für das OASIS-Projekt wurden demgemäß alle erfolgreich eingesetzt.

II.3. NOTWENDIGKEIT UND ANGEMESSENHEIT DER GELEISTETEN ARBEIT

Die mit den Projektmitteln im Projektzeitraum geschaffenen erst- und einmaligen Datensätze aus dem Indischen Ozean, die neuen Erkenntnisse und die daraus resultierenden Publikationen tragen zum Verständnis der Ozeanemissionen bei, die durch Transportprozesse durch die Atmosphäre einen Einfluss auf die freie Troposphäre und Stratosphäre besitzen. Zum ersten Mal liegt ein Datensatz aus dem Indischen Ozean über die Quellen halogener Verbindungen und ihrem Transport durch die Atmosphäre während Südwestmonsun vor. Im Projekt wurden Werkzeuge entwickelt, um die Ozeankonzentrationen - und Atmosphärenflüsse halogener und schwefelhaltiger Verbindungen zu parametrisieren und dadurch zu einem besseren Prozessverständnis zu gelangen. Diese wissenschaftlichen Erkenntnisse dienen der besseren Abschätzung des stratosphärischen Halogengehalts und damit einer genaueren Vorhersagbarkeit der Ozonentwicklung im Rahmen zukünftiger Klimaänderungen und atmosphärischer Verschmutzung. An den Seereisen nahmen viele Wissenschaftler mit eigenständigen Thematiken (z.B. Wassermassen, Phytoplankton, Aerosole) teil, die jedoch auch alle einen Bezug zu der im Projekt gestellten Fragestellung aufweisen. Diese Arbeiten wurden aus eigenen Mitteln bestritten und stellen daher einen wesentlichen Mehrwert, der für das Projekt OASIS bereitgestellten Forschungsmittel dar.

Simultane Messungen der halogenierten Spurengase in der Atmosphäre und im Ozean sind bisher nur in wenigen Veröffentlichungen zu finden, an denen wir maßgeblich beteiligt sind. Unsere ausgewiesene Expertise in diesem ozeanischen, atmosphärischen und analytischen Wissenschaftsbereich, führt zum besseren Verständnis der ozeanischen Emissionen, von denen große Mengen durch Konvektionsprozesse in die obere Atmosphäre transportiert werden können. Somit wird der Zusammenhang zwischen Prozessen im Ozean und der schützenden stratosphärischen Ozonschicht hergestellt. Die neuen wissenschaftlichen Erkenntnisse wurden auf internationalen Konferenzen präsentiert und in von Experten begutachteten wissenschaftlichen Veröffentlichungen publiziert. Dadurch wurden innovative Ideen für zukünftige Projekte im Hinblick auf die schützende Ozonschicht und den Klimawandel geschaffen. Die in dem Projekt entstandenen Daten werden langfristig in der PANGAEA Datenbank archiviert, wodurch sie zukünftigen wissenschaftlichen Arbeiten zur Verfügung stehen. Die Beobachtung der Entwicklungen der ozeanischen Emissionen, sowie die anthropogenen und natürlichen Einflussfaktoren müssen auch weiterhin im Fokus der Wissenschaftler bleiben, da sie eine bisher unbekannte und vermutlich unterschätzte Rolle im Klimawandel spielen. Die Publikationen über die Ozean-Atmosphäre-Wechselwirkungen im Indischen Ozean aus diesem Projekt und die gewonnenen Daten stellen einen unverzichtbaren Bestandteil der Forschung für globale Klimawandel-Studien mit besonderem Schwerpunkt auf anthropogene und natürliche Effekte hin dar.

II.4. Der voraussichtliche Nutzen und die Verwertbarkeit der Ergebnisse

Das Projekt „SO235- OASIS: Organische sehr kurzlebige Substanzen und ihr Luft-Wasser-Austausch vom Indischen Ozean bis in die Stratosphäre und SO 234-2 SPACES Ausbildung“ beinhaltet einen aktuellen Forschungsschwerpunkt der Ozonforschung. Generell spielen halogenierte VSLs, insbesondere in Kombination mit erhöhten stratosphärischen Sulfat-Aerosolkonzentrationen, eine bedeutende Rolle beim heutigen Ozonabbau. In OASIS wurde der Zusammenhang zwischen Prozessen im Ozean und der schützenden stratosphärischen Ozonschicht hergestellt, und im Besonderen der Beitrag ozeanischer kurzlebiger Verbindungen zum stratosphärischen Brom- und Schwefelgehalt aus dem Indischen Ozean während Südwestmonsun untersucht. Der Indische Ozean ist ein wenig untersuchtes Meeresgebiet im Hinblick darauf, welche Rolle die ozeanischen Emissionen sehr kurzlebiger halogener und schwefelhaltiger Substanzen für die Stratosphäre während Südwestmonsun spielen, was ihre Quellen und Quellstärken für die Troposphäre sind, wie stark ihr Eintrag in die Stratosphäre ist und was man über zukünftige Entwicklungen vorhersagen kann.

Zusätzlich zu seiner großen Bedeutung im Klimasystem stellt der Indische Ozean ein ausgezeichnetes Labor für ozeanische biogeochemische und physikalische Prozesse, Atmosphäre-Ozean-Wechselwirkungen und für globale Klimawandel-Studien mit besonderem Schwerpunkt auf anthropogene und natürliche Effekte hin dar.

Der stratosphärische Bromeintrag vom Ozean wird aktuell weltweit mit etwa 5 ppt als Annahme in Klimachemiemodellen berücksichtigt, um den beobachteten Ozonabbau der mittleren Breiten simulieren zu können. Die Frage woher, wie schnell und in welchen Mengen die ozeanischen VSLs in die Stratosphäre gelangen, ist bisher unzureichend geklärt. Die gewonnenen Informationen durch das Projekt OASIS tragen dazu bei zukünftige Änderungen in der atmosphärischen Zusammensetzung und Chemie insbesondere der Ozonverteilung in Zusammenhang mit dem globalen Klimawandel besser einschätzen und vorhersagen zu können. Das interdisziplinäre Forschungskonzept der SONNE-Expedition in den tropischen West-Indik diente der wissenschaftlichen Überprüfung gesellschaftspolitisch relevanter Bewertungen im „Ozon-Assessment“ der WMO (World Meteorological Organization) und liefert Beiträge zu Studien des IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change). Die Vernetzung der wissenschaftlichen Disziplinen Biologie, Chemie, Ozeanographie und Atmosphäre führt zu Synergien der vorhandenen Expertisen, die für komplexe Studien des Erdsystems sehr nützlich sind. Die durchgeführte Forschung verbindet Klimaveränderungen an der Meeresoberfläche mit dem Ozongehalt in der Stratosphäre. Die OASIS Forschungsreise verfolgte somit direkt die Ziele des marinen Forschungsprogrammes des BMBF, das zu einem erweiterten Verständnis der Rolle der Ozeane im globalen Klimasystem beiträgt.

Die neuen wissenschaftlichen Erkenntnisse wurden auf internationalen Konferenzen präsentiert und in von Experten begutachteten wissenschaftlichen Veröffentlichungen publiziert (siehe Erfolgskontrollbericht). Die im Projektzeitraum geschaffenen Erkenntnisse und die daraus resultierenden Publikationen umfassen wichtige Forschungsfelder (siehe II.3) und tragen zum Verständnis der globalen Ozeanemissionen bei, die durch troposphärischen Transport und stratosphärische Quellgasinjektion einen Einfluss auf die freie Troposphäre und Stratosphäre besitzen. Durch das Projekt wurden zusätzliche Ressourcen für die wissenschaftliche Gemeinschaft generiert, und es wurden Werkzeuge bereitgestellt, um die Ozean- und Atmosphärenflüsse der halogenierten und schwefelhaltigen Verbindungen zu parametrisieren und dadurch zu einem besseren Prozessverständnis zu gelangen. Diese wissenschaftlichen Erkenntnisse dienen zu einer verbesserten Vorhersagbarkeit des Halogen- und Schwefelgehalts und somit der Ozonentwicklung im Rahmen zukünftiger Klimaänderungen und atmosphärischer Verschmutzung.

Das internationale Umweltabkommen von Montreal (1987) zum Schutz der Ozonschicht und das Klimaabkommen von Kyoto (1997) zur Emissionsbegrenzung von Treibhausgasen haben gezeigt, wie wichtig die Kenntnisse über die Emissionen von Spurengasen bei politischen Entscheidungen sind. Verlässliche Angaben über Quellen und Senken von Treibhausgasen und ozonzerstörenden Verbindungen sind besonders zur Durchführung und Bewertung von Klimaschutzmaßnahmen notwendig. Im „Scientific Assessment of Ozone Depletion“ der World Meteorological Organization (WMO) von 2014 stehen die kurzlebigen atmosphärischen Spurenstoffe weiterhin im Fokus des wissenschaftlichen und öffentlichen Interesses. Bei dem OASIS-SONNE Projekt handelte es sich um einen Beitrag zur Grundlagenforschung, bei dem keine unmittelbaren wirtschaftlichen Erfolgsaussichten bestehen. Ziel des Projektes war es, Fachwissen zu globalen Umweltfragestellungen und Anpassungsmechanismen an den globalen Klimawandel zu liefern, was die Bereitstellung wissenschaftlicher Beiträge von öffentlichem Interesse beinhaltet. Um den Zusammenhang zwischen Klimaveränderungen an der Meeresoberfläche und dem Ozongehalt in der Stratosphäre besser zu verstehen, wurden Daten auf neuartige Weise zusammengefasst und die Erkenntnisse daraus liefern Beiträge zum neuen „WMO Ozone-Assessment“ und zu Fragen und Studien des IPCC. Die gewonnenen Informationen wurden in großskalige Modelle eingebaut und tragen somit dazu bei,

zukünftigen Änderungen in der Atmosphärenchemie und der Ozonverteilung in Zusammenhang mit dem globalen Wandel vorherzusagen.

Die gewonnenen Erkenntnisse dieses Projektes werden in weitere nationale und internationale Projekte mit einfließen. In SO235-OASIS wurden innovative Grundlagen für zukünftige Projekte im Hinblick auf die schützende Ozonschicht und den Klimawandel geschaffen. Da die halogenierten und schwefelhaltigen Verbindungen, die aus dem Ozean in die Atmosphäre gelangen sehr heterogen verteilt sind und ihr gegenwärtiger und zukünftiger Eintrag in die Atmosphäre von vielerlei Faktoren abhängt, die weiterhin unzureichend verstanden sind, sind weitere Untersuchungen notwendig. Da ein Teil der chemischen Verbindungen auch durch anthropogene Aktivitäten beeinflusst wird, müssen die Entwicklungen der biogenen, ozeanischen Emissionen, sowie die anthropogenen und natürlichen Einflussfaktoren auch weiterhin im Fokus der Wissenschaftler bleiben.

II.5. Während der Durchführung des Vorhabens bekannt gewordener Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Arbeiten aus anderen Vorhaben haben die Ergebnisse aus OASIS bestätigt, dass ozeanische VSLs eine wichtige Rolle für die Entwicklung der Ozonschicht in diesem Jahrhundert spielen. Simulationen der Entwicklung des antarktischen Ozonlochs zum Beispiel sind unter Berücksichtigung von VSLs deutlich realistischer (Sinnhuber und Meul, 2015; Oman et al., 2016) und führen zu einer später prognostizierten Erholung des Ozonlochs als Simulationen, die VSLs vernachlässigen (Oman et al., 2016). Bromierte VSLs werden nun in vielen internationalen Klimachemiemodellen berücksichtigt (Hossaini et al., 2016). Eine große Unsicherheit, neben den Simulationen von Transport von der Oberfläche in die Stratosphäre, besteht weiterhin in den ozeanischen Emissionen der Gase. Während der Durchführung des Vorhabens fand eine internationale Flugzeugkampagne im tropischen Westpazifik statt, welche Messungen der bromierten VSLs vom Erdboden bis in die Stratosphäre mit einbezog (Andrews et al., 2016).

Hinsichtlich der Schwefelemissionen wurde das Schwefelbudget der Atmosphäre mittels eines komplexen Chemieklimamodells simuliert (Sheng et al., 2015). In dieser Studie wurde die Bedeutung von OCS für die stratosphärische Sulfatschicht bestätigt, sowie der geringe aber signifikante Einfluss von DMS auf die Stratosphäre gezeigt. Problematisch für Simulationen mit interaktiv berechneten marinen Emissionen in atmosphärischen Klimamodellen ist nach wie vor das ungeschlossene atmosphärische Budget für OCS. Während der OASIS-Projektlaufzeit wurde die fehlende Quelle mittels Satelliten (Kuai et al., 2015, Glatthor et al., 2015) sowie per FTIR-Messungen (Wang et al., 2016) weiter charakterisiert. Abschätzungen belaufen sich zurzeit auf 600-800 Gg S pro Jahr.

Andrews, S. J., Carpenter, L. J., Apel, E. C., Atlas, E., Donets, V., Hopkins, J. R., Hornbrook, R. S., Lewis, A. C., Lidster, R. T., Lueb, R., Minaeian, J., Navarro, M., Punjabi, S., Riemer, D., and Schauffler, S.: A comparison of very short lived halocarbon (VSLs) and DMS aircraft measurements in the tropical west Pacific from CAST, ATTREX and CONTRAST, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 5213-5225, doi:10.5194/amt-9-5213-2016, 2016.

Brühl, C., Lelieveld, J., Tost, H., Höpfner, M., and Glatthor, N.: Stratospheric sulfur and its implications for radiative forcing simulated by the chemistry climate model emac, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 120, 2103-2118, 10.1002/2014jd022430, 2015.

Glatthor, N., Höpfner, M., Baker, I. T., Berry, J., Campbell, J. E., Kawa, S. R., Krysztofiak, G., Leyser, A., Sinnhuber, B. M., Stiller, G. P., Stineciper, J., and Clarmann, T. v.: Tropical sources and

sinks of carbonyl sulfide observed from space, *Geophysical Research Letters*, n/a-n/a, 10.1002/2015gl066293, 2015.

Kuai, L., Worden, J. R., Campbell, J. E., Kulawik, S. S., Li, K.-F., Lee, M., Weidner, R. J., Montzka, S. A., Moore, F. L., Berry, J. A., Baker, I., Denning, A. S., Bian, H., Bowman, K. W., Liu, J., and Yung, Y. L.: Estimate of carbonyl sulfide tropical oceanic surface fluxes using aura tropospheric emission spectrometer observations, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120, 11,012-011,023, 10.1002/2015jd023493, 2015.

Oman, L. D., A. R. Douglass, R. J. Salawitch, T. P. Canty, J. R. Ziemke, and M. Manyin, The effect of representing bromine from VLSs on the simulation and evolution of Antarctic ozone, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 9869–9876, doi:10.1002/2016GL070471, 2016.

Sheng, J.-X., Weisenstein, D. K., Luo, B.-P., Rozanov, E., Stenke, A., Anet, J., Bingemer, H., and Peter, T.: Global atmospheric sulfur budget under volcanically quiescent conditions: Aerosol-chemistry-climate model predictions and validation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120, 2014JD021985, 10.1002/2014jd021985, 2015.

Wang, Y., Deutscher, N. M., Palm, M., Warneke, T., Notholt, J., Baker, I., Berry, J., Suntharalingam, P., Jones, N., Mahieu, E., Lejeune, B., Hannigan, J., Conway, S., Mendonca, J., Strong, K., Campbell, J. E., Wolf, A., and Kremser, S.: Towards understanding the variability in biospheric CO₂ fluxes: Using FTIR spectrometry and a chemical transport model to investigate the sources and sinks of carbonyl sulfide and its link to CO₂, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2123-2138, 10.5194/acp-16-2123-2016, 2016.

II.6. Die erfolgten und geplanten Veröffentlichungen der Ergebnisse

Folgende Publikationen wurden oder werden in 2017 im Rahmen von OASIS veröffentlicht:

Booge, D., Marandino, C. A., Schlundt, C., Palmer, P. I., Schlundt, M., Atlas, E. L., Bracher, A., Saltzman, E. S., and Wallace, D. W. R.: Can simple models predict large-scale surface ocean isoprene concentrations?, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 11807-11821, doi:10.5194/acp-16-11807-2016, 2016.

Fiehn, A., Quack, B., Hepach, H., Fuhlbrügge, S., Tegtmeier, S., Toohey, M., Atlas, E., and Krüger, K.: Delivery of halogenated very short-lived substances from the West Indian Ocean to the stratosphere during Asian summer monsoon, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, doi:10.5194/acp-2017-8, in review, 2017a.

Fiehn, A., Quack, B., Marandino, C., and Krüger, K.: Seasonal and interannual variability of transport from the West Indian Ocean to the stratosphere, in preparation for *Atmos. Chem. Phys.*, 2017b.

Krüger, K., Quack, B. and Marandino, C., eds., RV SONNE Fahrtbericht / Cruise Report SO234-2, 08.-20.07.2014, Durban, South Africa - Port Louis, Mauritius - SPACES OASIS Indian Ocean, GEOMAR Report, N. Ser. 020. GEOMAR, Kiel, Germany, 87 pp. DOI 10.3289, 2014a.

Krüger, K., Quack, B. and Marandino, C., eds., RV SONNE Fahrtbericht / Cruise Report SO235, 23.07.-07.08.2014, Port Louis, Mauritius to Malé, Maldives GEOMAR Report, N. Ser. 021. GEOMAR, Kiel, Germany, 65 pp. DOI 10.3289, 2014b.

Krüger, K., B. Quack and C. Marandino, OASIS-research cruises SO234-2 and SO235 of R/V SONNE in summer 2014 in the tropical Indian Ocean investigating “Organic very short lived substances and their Air-Sea exchange from the Indian Ocean to the Stratosphere” and more biogeochemical and oceanographic parameters, Indian Ocean Bubble 2, Report No. 3, PP. 9-10, 2015.

Lennartz, S. T., Marandino, C. A., von Hobe, M., Cortes, P., Quack, B., Simo, R., Booge, D., Pozzer, A., Steinhoff, T., Arevalo-Martinez, D. L., Kloss, C., Bracher, A., Röttgers, R., Atlas, E., and Krüger, K.: Direct oceanic emissions unlikely to account for the missing source of atmospheric carbonyl sulfide, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 385-402, doi:10.5194/acp-17-385-2017, 2017.

Ma, X., Bange, H.W., Eirund, G.K. and Arévalo-Martínez, D.L., Nitrous oxide and hydroxylamine measurements in the Southwest Indian Ocean. *J. Mar. Sys.*, submission in March 2017.

Quack, B., Hepach, H., Atlas, E., Krüger, K., Fiehn A., Fuhlbrügge, S., Tegtmeier, S., Distribution and air-sea fluxes of halocarbons in the western Pacific and Indian Ocean, in prep.

Zavarsky, A., Booge, D., Fiehn, A., Krüger, K., Atlas, E., and Marandino, C., The influence of air-sea fluxes on atmospheric aerosols during the summer monsoon over the Indian Ocean, submitted to *Scientific Reports*, 2017.

Zavarsky A., Steinhoff, C., Marandino, C., Gas Transfer velocity differences between CO₂ and DMS explained by a hybrid gas transfer model, in Vorbereitung.

Weitere Publikationen wurden im Zeitraum des OASIS Projektes unter Mitwirkung von Projektteilnehmern zu verwandten Themen veröffentlicht:

Fuhlbrügge, S., Meteorological constraints on marine atmospheric halocarbons and their transport to the free troposphere, (Doctoral thesis/PhD), Christian-Albrechts-Universität Kiel, Kiel, Germany, 177 pp., November 2015.

Fuhlbrügge, S., Quack, B., Tegtmeier, S., Atlas, E., Hepach, H., Shi, Q., Raimund, S., Krüger, K., The contribution of oceanic halocarbons to marine and free tropospheric air over the tropical West Pacific, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 7569-7585, doi:10.5194/acp-16-7569-2016, 2016.

Hepach, H., Marine emissions of halogenated trace gases from the tropical ocean (Doctoral thesis/PhD), Christian-Albrechts-Universität Kiel, Kiel, Germany, 201 pp., 2014.

Hepach, H., Quack, B., Raimund, S., Fischer T., Atlas, E., Bracher, A., Halocarbon emissions and sources in the equatorial Atlantic Cold Tongue, *Biogeosciences*, 12 (21), 6369-6387, doi:10.5194/bg-12-6369-2015, 2015.

Hepach, H., Quack, B., Ziska, F., Fuhlbrügge, S., Atlas, E. L., Krüger, K., Peeken, I., Wallace, D. W. R., Drivers of diel and regional variations of halocarbon emissions from the tropical North East Atlantic, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1255-1275, doi:10.5194/acp-14-1255-2014, 2014.

Hossaini, R., Mantle, H., Chipperfield, M. P., Montzka, S. A., Hamer, P., Ziska, F., Quack, B., Krüger, K., Tegtmeier, S., Atlas, E., Sala, S., Engel, A., Bönisch, H., Keber, T., Oram, D., Mills, G., Ordóñez, C., Saiz-Lopez, A., Warwick, N., Liang, Q., Feng, W., Moore, F., Miller, B. R., Marécal, V., Richards, N. A. D., Dorf, M., Pfeilsticker, K., Evaluating global emission inventories of biogenic bromocarbons, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11819-11838, doi:10.5194/acp-13-11819-2013, 2013.

Hossaini, R., Patra, P. K., Leeson, A. A., Krysztofiak, G., Abraham, N. L., Andrews, S. J., Archibald, A. T., Aschmann, J., Atlas, E. L., Belikov, D. A., Bönisch, H., Butler, R., Carpenter, L. J., Dhomse, S., Dorf, M., Engel, A., Feng, L., Feng, W., Fuhlbrügge, S., Griffiths, P. T., Harris, N. R. P., Hommel, R., Keber, T., Krüger, K., Lennartz, S. T., Maksyutov, S., Mantle, H., Mills, G. P., Miller, B., Montzka, S. A., Moore, F., Navarro, M. A., Oram, D. E., Palmer, P. I., Pfeilsticker, K., Pyle, J. A., Quack, B., Robinson, A. D., Saikawa, E., Saiz-Lopez, A., Sala, S., Sinnhuber, B.-M., Taguchi, S., Tegtmeier, S., Lidster, R. T., Wilson, C. and Ziska, F. (2016) A multi-model intercomparison of halogenated very short-lived substances (TransCom-VSLS): linking oceanic emissions and tropospheric transport for a

reconciled estimate of the stratospheric source gas injection of bromine Atmospheric Chemistry and Physics, 16 (14). pp. 9163-9187, DOI 10.5194/acp-16-9163-2016, 2016.

Lennartz, S. T., Krysztofiak-Tong, G., Marandino, C., Sinnhuber, B.-M., Tegtmeier, S., Ziska, F., Hossaini, R., Krüger, K., Montzka, S. A., Atlas, E., Oram, D., Keber, T., Bönisch, H., and Quack, B., Modelling marine emissions and atmospheric distributions of halocarbons and dimethyl sulfide: the influence of prescribed water concentration vs. prescribed emissions, ACP, 15 (20), 11753-11772, doi:10.5194/acp-15-11753-2015, 2015.

Stemmler, I., Hense, I., Quack, B., Marine sources of bromoform in the global open ocean – global patterns and emissions, Biogeosciences, 12, 1967-1981, doi:10.5194/bg-12-1967-2015, 2015.

Stemmler, I., Hense, I., Quack, B., Maier-Reimer, E., Methyl iodide production in the open ocean, Biogeosciences, 11, 4459-4476, doi:10.5194/bg-11-4459-2014, 2014.

Tegtmeier, S., Krüger, K., Quack, B., Atlas, E., Blake, D. R., Boenisch, H., Engel, A., Hepach, H., Hossaini, R., Navarro, M. A., Raimund, S., Sala, S., Shi, Q. and Ziska, F., The contribution of oceanic methyl iodide to stratospheric iodine Atmospheric Chemistry and Physics, 13 . pp. 11869-11886. DOI 10.5194/acp-13-11869-2013, 2013.

Tegtmeier, S., Ziska, F., Pisso, I., Quack, B., Velders, G. J. M., Yang, X., and Krüger, K.: Oceanic bromine emissions weighted by their ozone depletion potential, Atmospheric Chemistry and Physics, 13647-13663. doi 10.5194/acp-15-13647-2015, 2015.

Ziska, F., Quack, B., Abrahamsson, K., Archer, S. D., Atlas, E., Bell, T., Butler, J. H., Carpenter, L. J., Jones, C. E., Harris, N. R. P., Hepach, H., Heumann, K. G., Hughes, C., Kuss, J., Krüger, K., Liss, P., Moore, R. M., Orlikowska, A., Raimund, S., Reeves, C. E., Reifenhäuser, W., Robinson, A. D., Schall, C., Tanhua, T., Tegtmeier, S., Turner, S., Wang, L., Wallace, D., Williams, J., Yamamoto, H., Yvon-Lewis, S., Yokouchi, Y., Global sea-to-air flux climatology for bromoform, dibromomethane and methyl iodide, Atmos. Chem. Phys., doi:10.5194/acp-13-8915-2013, 13, 8915-8934, 2013.

Ziska, F., Quack, B., Tegtmeier, S., Stemmler, I., Krüger, K., Future emissions of marine halocarbons, Journal of Atmospheric Chemistry, DOI 10.1007/s10874-016-9355-3, 2017.

Überarbeitete Fahrtmessungen und neue Auswertungen sind in die GEOMAR Datenbank (<https://portal.geomar.de/group/oasis/>) eingetragen. Die Daten der OASIS-Fahrt sind Bestandteil von vier Dissertationen an der Universität Kiel/ GEOMAR (Sinikka Lennartz, Dennis Booge, Alexander Zavorsky, Alina Fiehn), die im Jahr 2017 fertiggestellt werden sollen. Die vorhandenen OASIS Daten wurden weiterhin auf internationalen Konferenzen präsentiert. Mehrere Publikationen über die Quellen ozeanischer Spurengase und ihren atmosphärischen Auswirkungen sind im Berichtszeitraum veröffentlicht worden, in denen die Daten der OASIS-Fahrt eingeflossen sind. Weitere Publikationen befinden sich kurz vor dem Einreichen in begutachtete Zeitschriften. Die Messungen der OASIS-Fahrten tragen in der aktuellen deutschen „Integrated German Indian Ocean Study“ (IGIOS) - Initiative von Hermann Bange (GEOMAR) und Birgit Gaye (Universität Hamburg) im Indischen Ozean bei (Bange und Gaye, 2016).