

Über die Variabilität der physikalischen Eigenschaften atmosphärischer Aerosolpartikel



Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim
Fachbereich Geowissenschaften / Geographie
der Johann Wolfgang Goethe-Universität
in Frankfurt am Main

von

Dipl. Met. Ulrich Bundke
aus Frankfurt am Main

Vom Fachbereich Geowissenschaften / Geographie der Johann Wolfgang
Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan:

Prof. Dr. Wolfgang Oschmann

Gutachter:

Prof. Dr. Gottfried Hänel, Universität Frankfurt

Prof. Dr. Ulrich Schmidt, Universität Frankfurt

Datum der Disputation: 11.09.2002



Inhaltsverzeichnis

I	Rahmenkonzept	1
1	Überblick	3
1.1	Einführung	3
1.2	Das Klimasystem der Erde	7
1.3	Aerosolpartikel & Klima	12
1.3.1	Indirekter Effekt	12
1.3.2	Direkter Effekt	15
1.3.3	Forschungsbedarf	17
1.4	Aerosolpartikel & Spurenstoffkreisläufe	21
1.5	Aerosole und Gesundheit	23
1.6	Zusammenfassung	26
II	Experimentelle Arbeiten	27
2	Strahlung & optische Eigenschaften der Partikel	31
2.1	Grundlagen der Strahlungsübertragung	31
2.2	Messungen an Partikeln im trockenen Zustand	34
2.2.1	Aerosolphotometer	34
2.2.2	Integrierendes Nephelometer	38
2.2.3	Integrating Plate Photometer (IP)	41
2.2.4	PSAP: Ruß (Particle Soot)-Absorptions Photometer	43
2.3	Messungen an Partikeln bei Umgebungsfeuchte	44
2.3.1	Telephotometer	44
2.3.2	Horizontales Lidar	47
2.4	Strahlungsmessungen im solaren Spektralbereich	48
3	Mikrophysikalische und chemische Eigenschaften der Partikel	51
3.1	Größenverteilungsmessungen	52
3.2	Wachstumsfaktoren bei 90% und 60% rel. Feuchte und wasserlöslicher Anteil der Aerosolpartikel	56

3.3	Chemische Zusammensetzung	57
III	Schließung	59
4	Messwertevergleich (direkte Schließung)	63
4.1	Absorptionskoeffizient	65
4.2	Streukoeffizient	69
4.3	Single Scattering Albedo	72
4.4	Extinktionskoeffizient der Partikel im feuchten Zustand	74
4.5	Zusammenfassung	76
5	Indirekte Schließung	77
5.1	Kugelschalenmodell: Theoretische Grundlagen	77
5.1.1	Feuchteabhängigkeit des Extinktionskoeffizienten der Partikel	77
5.1.2	Fehlerbetrachtung und Sensitivitätsstudie	85
5.2	Feuchtekorrektur der Telephotometerdaten	87
5.3	Optische Eigenschaften der Partikel berechnet mit dem Kugelschalenmodell	92
5.3.1	Sensitivitätsstudie und Fehleranalyse	93
5.3.2	Schließungsergebnisse	96
5.4	Zusammenfassung	103
IV	Angewandte Aerosolforschung	105
6	Meteorologische Anwendungen	109
6.1	Energiebilanz der Atmosphäre	110
6.1.1	Auswertgleichungen	111
6.1.2	Ergebnisse	113
6.1.3	Fehler / Sensitivitätsanalyse	117
6.2	Wolkenphysik	119
6.2.1	Modell	119
6.2.2	Ergebnisse	123
6.2.3	Fehler / Sensitivitätsanalyse	124
6.2.4	Ausblick	129
6.3	Sedimentation von Partikeln	130
6.3.1	Theorie	130
6.3.2	Fehler / Sensitivitätsanalyse	134
6.3.3	Ergebnisse	137

6.4	Näherungsfunktionen	137
6.5	Zusammenfassung	145
7	Anwendung in Gesundheit und Medizin	149
7.1	Grundlagen	150
7.1.1	Der Atemtrakt : Anatomie, Physiologie und Morphologie .	150
7.1.2	Modell (Partikeldeposition & Selbstreinigung) der Lunge	152
7.2	Ergebnisse	157
8	Meteorologische und statistische Analyse der Ergebnisse	167
8.1	Überblick	167
8.2	Beschreibung der Messwerteverteilung mit Hilfe der Weibull- Verteilungsfunktion	169
8.3	Trajektorienanalyse	171
8.4	Zeitreihenanalyse	176
8.5	These: Die optischen Eigenschaften trockener Partikel sind offen- sichtlich mit der Periodenlänge planetarer Wellen (Rossbywellen) verknüpft	180
8.6	Zusammenfassung	186
V	Zusammenfassung und Ausblick	187
VI	Anhang	195
A	Technische Verbesserungen der Apparaturen	197
A.1	Aerosolphotometer	197
A.2	Strahlungsmessungen	197
B	Gleichungen	201
B.1	Korrektur der Größenverteilungsmessungen	201
B.1.1	Konvertierung des aerodynamischen- in den Volumen- Äquivalentradius	201
B.1.2	Dichte des „feuchten“ Partikels	203
B.2	DMPS Korrektur: Konvertierung des Stokes-Radius in den Volu- menäquivalentradius	204
B.3	Bestimmung des Aktivierungsparameters	205
C	Tabellen: Sensitivitätsanalyse des Kugelschalenmodells	209
	Verzeichnis der Abbildungen	215

Tabellenverzeichnis	223
Abkürzungsverzeichnis	229
Verzeichnis der Variablennamen und Konstanten	233
Literaturverzeichnis	241

Teil I

Rahmenkonzept

Kapitel 1

Überblick

1.1 Einführung

Die Atmosphäre: Die Atmosphäre unserer Erde besteht hauptsächlich aus einem Gemisch aus Gasen. Bei einer Dichte von $1,3 \text{ kg/m}^3$ setzt sich 1 m^3 Luft aus $0,96 \text{ kg}$ Stickstoff, $0,3 \text{ kg}$ Sauerstoff, 16 g Argon, 66 g Kohlendioxid und im Mittel rund aus 10 g Wasserdampf zusammen. Bis auf den hoch variablen Wasserdampf sind diese Werte praktisch überall auf der Erde identisch. Über 99% aller Bestandteile der Luft sind also mit wenigen Messungen gut erfassbar und es scheint, dass der kleine Rest der Spurenstoffe vernachlässigbar ist. Die Wissenschaftsgeschichte der letzten 100 Jahre und nicht zuletzt die Entdeckung des Ozonlochs hat aber genau das Gegenteil bewiesen [Horvath, 1996].

Die Spurenstoffe bestehen zum Teil aus gasförmigen, aber auch aus fest/flüssigen Bestandteilen. Die Spurenstoffe sind durch ein sehr komplexes Beziehungsgeflecht von chemischen Reaktionen und physikalischen Abhängigkeiten verbunden. Die am häufigsten zu findenden Bestandteile (pro m^3) sind: $1,1 \text{ mg}$ Methan, $60\text{-}250 \text{ }\mu\text{g}$ Kohlenmonoxid, $\sim 50 \text{ }\mu\text{g}$ Wasserstoff, $30\text{-}200 \text{ }\mu\text{g}$ Ozon, $0,6 \text{ mg}$ Lachgas (N_2O), $8\text{-}170 \text{ }\mu\text{g}$ NO_x und $0,2\text{-}100 \text{ }\mu\text{g}$ Schwefeldioxid¹.

Außerhalb von Wolken beträgt die Gesamtmasse der fest/flüssigen Bestandteile zwischen einem und mehreren hundert, in Sandstürmen bis zu $30.000 \text{ }\mu\text{g}$ pro m^3 . Die fest/flüssigen Bestandteile, die im Folgenden kurz Partikel oder auch Aerosolpartikel genannt werden sollen, stellen also innerhalb der Spurenstoffe nur einen kleinen Masseanteil. Trotz ihres kleinen Anteils an der Gesamtmasse der Luft mit maximal etwa $\frac{2}{1000}\%$ haben Aerosolpartikel auf die Prozesse in der Atmosphäre einen entscheidenden Einfluss: Eine Einführung, wie Aerosolpartikel das Klimasystem der Erde beeinflussen, wird im Anschluss an diese einleitenden

¹Der angegebene untere Wert entspricht hierbei den Messwerten in polaren (unverschmutzten) Regionen und der obere Wert einem urbanen Messort [Horvath, 1996].

Worte nach einem kurzen allgemeinen Überblick über das Klimasystem der Erde (Abschnitt 1.2), im Abschnitt 1.3 gegeben. Neben dem so genannten „indirekten Effekt“ (Abschnitt 1.3.1), wird auch der „Direkte Effekt“ der Aerosolpartikel auf das Klimasystem im Abschnitt 1.3.2 beschrieben. Der in diesem Zusammenhang noch vorhandene Forschungsbedarf wird im Anschluss daran im Abschnitt 1.3.3 vorgestellt. Neben dem Einfluss der Partikel auf das Klimasystem beeinflussen Partikel auch geochemische Kreisläufe, die ihrerseits auch Rückkopplungen auf das Klimasystem haben. Abschnitt 1.4 zeigt dem Leser an ausgesuchten Beispielen Wirkungsmechanismen, wie Aerosolpartikel letztendlich die Atmosphärenchemie und so direkt oder indirekt auch die geochemischen Zyklen beeinflussen. Die allgemeine Einordnung der vorliegenden Arbeit in aktuelle Problemstellungen der Aerosolphysik wird mit einem Überblick der Auswirkungen von Partikeln auf die menschliche Gesundheit im Abschnitt 1.5 abgeschlossen.

Es zeigt sich, dass unser Verständnis für globale und lokale Wechselwirkungen der Partikel mit der Umwelt noch sehr lückenhaft ist. Insbesondere mangelt es bei der Betrachtung der Auswirkungen von Partikeln auf das Klima unserer Erde an einer räumlichen und zeitlichen Klimatologie der physiko-chemischen Eigenschaften der Partikel. Die Addition von Messfehlern und die Verwendung von Annahmen bei Modellrechnungen machen unser Bild der Partikeleigenschaften zusätzlich unschärfer und unsere Aussagen über ihre Wirkung im Gesamtsystem Erde – Atmosphäre teilweise sehr unsicher.

Mit Hilfe von Schließungsexperimenten wird nun innerhalb der Aerosolforschung versucht, neben einem Methodenvergleich, auch die örtliche und zeitliche Variabilität der Partikeleigenschaften zunächst auf lokaler und durch Vergleich vieler Einzelerperimente mit Satellitendaten auch auf globaler Skala zu charakterisieren.

Hierbei macht man sich die zahlreichen Vernetzungen und Abhängigkeiten innerhalb der Aerosolphysik zunutze. So sind die optischen Eigenschaften der Partikel und ihre Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchte zum Beispiel von der Größenverteilung, der chemischen Zusammensetzung und der Morphologie der Partikel abhängig. Ebenso beeinflussen die mikrophysikalischen und chemischen Eigenschaften der Partikel direkt die Wolkenbildungsprozesse. Direkte Messungen der einen Größe, z.B. der Wolkentropfengröße und der Anzahlkonzentration, kann man nun über Modelle mit anderen Messgrößen (z.B. der gemessenen Größenverteilung und der chemischen Zusammensetzung der Partikel) verbinden (schließen). Nur Messungen, die innerhalb dieser Vernetzungen zusammen mit anderen Messungen und Modellrechnungen ein konsistentes Bild der Eigenschaften der Aerosolpartikel ergeben, kann man ohne große Bedenken verwenden.

Was hat man aber nun unter einem konsistenten Bild zu verstehen? Ist eine Schließung schon dann gelungen, wenn man in einem Teilbereich ein konsistentes Bild erreicht? Die Antwort lautet natürlich nein! Numerische Fehler, Fehler in

der Modellphysik oder Fehler, die durch falsche oder unzureichende Annahmen entstehen, könnten sich gegenseitig kompensieren und so zu einem falschen, aber scheinbar konsistentem Bild führen. Die Gefahr einer solchen scheinbaren Konsistenz wird umso geringer, je breiter die Basis der Vergleichsmöglichkeiten ist. Aus diesem Grund muss man auch die Auswirkungen der Messungen in anderen Teilgebieten, in denen die Aerosolphysik eine Rolle spielt, erproben.

Diese Arbeit befaßt sich mit eben diesem Thema. Innerhalb des Projektes LACE 98², einem Schließungsexperiment, gefördert vom Bundesministerium Bildung und Forschung (Bmb+f), wurden von unterschiedlichen Arbeitsgruppen zahlreiche Messungen zur Charakterisierung der atmosphärischen Aerosolpartikel vorgenommen. Die Messkampagne fand vom 13. Juli bis 14. August 1998 in Lindenberg/Falkenberg (Brandenburg) rund 50 km südöstlich von Berlin statt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Zeitreihen der am Erdboden einfallenden solaren Strahlung und Zeitreihen der optischen Eigenschaften³ der bodennahen Partikel im trockenen Zustand erstellt. Alle in dieser Arbeit verwendeten Messmethoden werden zusammen mit ihren theoretischen Grundlagen in Teil II sehr detailliert vorgestellt, da ein genaue Kenntnis der Methoden Voraussetzung für den sich in Teil III anschließenden Schließungsprozess ist.

Ferner wird in diesem Zusammenhang zwischen der so genannten direkten- und indirekten Schließung unterschieden. Eine Trennung der Begriffe erscheint mir wichtig, da damit gleichzeitig ein qualitativer Unterschied verbunden ist: Im Rahmen der *direkten Schließung* (Kapitel 4) werden die mit den verschiedenen Verfahren gewonnenen Messwerte des Absorptions-, des Streukoeffizienten und der Single Scattering Albedo direkt untereinander verglichen. Ziel ist es, die Verfahren untereinander zu kalibrieren und Schwachstellen und Fehler aufzudecken. Im Rahmen der *indirekten Schließung* (Kapitel 5), bei der u.a. Messungen des Extinktionskoeffizienten, sowohl der trockenen, als auch der feuchten Partikel miteinander verglichen werden, wird für diesen Vergleich ein komplexes mikrophysikalisches Modell der Partikel benötigt. Die Entwicklung dieses Modells auf der Basis der während LACE 98 verfügbaren mikrophysikalischen Messungen ist Gegenstand von Abschnitt 5.1. Mit Hilfe dieses Modells ist aber nicht nur der direkte Messwertevergleich des „trockenen“ u. „feuchten“ Extinktionskoeffizienten möglich, sondern darüberhinaus bedeutet der Erfolg der indirekten Schließung, dass das verwendete Modell, wie auch die der Modellrechnung zugrunde liegenden mikrophysikalischen Messungen konsistent mit den Messungen des Extinktionskoeffizienten sind. Neben einer umfangreichen Sensitivitätsstudie und der daran gekoppelten Fehleranalyse (5.1.2) des mikrophysikalischen Modells der Partikel

²LACE 98 : Lindenberg Aerosol Charakterisierungs Experiment, 1998

³Eine Definition der optischen Eigenschaften atmosphärischer Partikel ist in Kapitel 2.1 einzusehen. In diesem Zusammenhang werden die Begriffe Extinktionskoeffizient, Streukoeffizient und Single Scattering Albedo geklärt.

in diesem Kapitel werden etwas später (in Kapitel (6.4) dem Leser auch physikalisch motivierte Näherungsfunktionen für die Feuchteabhängigkeit des Extinktionskoeffizienten an die Hand gegeben, die die sonst nur sehr komplexe Feuchteabhängigkeit auch für Klimamodelle zugänglich machen. Mit Hilfe des mikrophysikalischen Modells werden neben der Feuchteabhängigkeit des Extinktionskoeffizienten auch alle oben genannten optischen Eigenschaften der Partikel aus den mikrophysikalischen Messungen berechnet. Nach der obligatorischen Sensitivitätsstudie, schließt der Vergleich (5.3) der verwendeten Verfahren zur Berechnung und Messung des Extinktions-, des Streu- und Rückstreuoeffizienten, sowie des Absorptionskoeffizienten und der Single Scattering Albedo die Schließung der optischen Eigenschaften der Partikel ab.

Wie im Ergebnisteil beschrieben wird, zeigte sich, dass alle Schließungen positiv ausfielen und somit für das Schließungsexperiment LACE 98 ein erwiesenermaßen konsistenter Datensatz der optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel vorliegt.⁴ Mit Hilfe dieses konsistenten Datensatzes wird nun in dem abschließenden Teil IV anhand von Modellrechnungen die Variabilität verschiedener, von den Partikeln direkt beeinflusster Größen für den Zeitraum von LACE 98 untersucht. In Kapitel 6 werden Anwendungen des LACE 98 - Datensatzes für die in der Meteorologie wichtigen Themengebiete: Energiebilanz der Atmosphäre (Erwärmungsrate, Volumenabsorption), der Wolkenphysik (maximale Übersättigung und Anzahlkonzentration der Wolkentropfen), sowie die Sedimentationsgeschwindigkeit der Aerosolpartikel im Schwerfeld der Erde untersucht. Dem Leser werden auch für diese meteorologisch und klimatologisch wichtigen Parameter Näherungsfunktionen vorgestellt, die auf der Datenbasis des Schließungsexperiments beruhend, Eingang in Klima- und Wettervorhersagemodelle finden können. In Kapitel 7 werden die für die Toxikologie⁵ und Pneumologie⁶ interessanten Modellrechnungen vorgestellt, die Ablagerung von Partikeln in der Lunge und die Lungenselbstreinigung gleichzeitig berücksichtigen. Als Ergebnis dieser Rechnungen erhält man u.a. die Gesamtmasse der trockenen Partikelsubstanz, die ein Mensch pro Tag während LACE 98 im Mittel aufnimmt. Diese Modellrechnungen sind die ersten, die die Langzeitexpositionen mit Aerosolpartikeln anhand eines solch detaillierten Datensatzes der mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel berechnen.

Am Ende dieser Arbeit wird in Kapitel 8 eine meteorologisch und statistisch

⁴Die Ergebnisse der Schließung der optischen Eigenschaften der Partikel während LACE 98 wurden in der Veröffentlichung *Bundke et al.* [2002] dem Fachpublikum zugänglich gemacht.

⁵Lehre von den schädlichen Wirkungen chemischer Substanzen auf lebende Organismen *Hildebrand* [1998]

⁶auch **Pulmologie**: Lehre von den Erkrankungen der intrathorakalen Atmungsorgane *Hildebrand* [1998]

orientierte Untersuchung an ausgesuchten Ergebnissen vorgestellt. Verteilungsfunktionen und eine Spektralanalyse der Messergebnisse können direkt mit den Ergebnissen der Diplomarbeit *Bundke* [1997] verglichen werden. Darüber hinaus führten diese Untersuchungen zu einem sehr interessanten neuen Ansatz, der die optischen Eigenschaften der Partikel direkt mit großskaligen, synoptischen Prozessen (Rossbywellen) verbindet.

Das übergeordnete Ziel dieser Arbeit kann man unter dem in dieser Studie *erweiterten Begriff der Schließung* zusammenfassen. Als Ergebnis liegt dann ein konsistentes, umfassendes Bild vor, das dem Leser die Eigenschaften der Aerosolpartikel während LACE 98 von den unterschiedlichsten Seiten zugänglich und in Form von Näherungen auch nutzbar macht. Neu ist hierbei, dass als Eingangsgrößen der Modelle fast ausschließlich Messungen oder daraus abgeleitete Größen verwendet wurden. Möglich wurde dies durch die Erweiterung der bestehenden Modelle um das in dieser Arbeit vorgestellte mikrophysikalische Modell des Feuchteinflusses auf die Partikel. Dem Verfasser ist keine Arbeit bekannt, die für einen gemeinsamen Zeitraum und ein Probevolumen, eine solch umfassende Charakterisierung der Partikeleigenschaften und deren Auswirkungen behandelt.

Wie sich zeigen wird, war zum Erfolg dieser Arbeit ein umfassendes Verständnis der physikalischen Vorgänge und ein hoher Arbeitsaufwand in Detailfragen notwendig. Dies zeigt sich in den vielen unabdingbaren Gleichungen in dieser Arbeit und in über 6000 geschriebenen Programmzeilen der Modelle. Die Ergebnisse der Modellläufe erforderten zusammen über 1,7 GB Festplattenspeicher. Auf der experimentellen Seite wurden schon im Vorfeld des eigentlichen Schließungsexperimentes zahlreiche Verbesserungen an den verwendeten Apparaturen im Rahmen der Qualitätssicherung vorgenommen. Eine kurze Zusammenfassung der Verbesserungen ist im Anhang A einzusehen. Betrachtet man das Endergebnis, so hat sich der Aufwand mehr als gelohnt.

Nach diesem Überblick soll nun eine Einführung über die Bedeutung der Partikel im Ökosystem Erde – Atmosphäre gegeben werden.

1.2 Das Klimasystem der Erde

Das Klima unserer Erde wird durch eine Reihe von gekoppelten Prozessen bestimmt. Der wichtigste, das Klimasystem mit Energie versorgende Prozess, ist die Absorption solarer Strahlung am Erdboden. Betrachtet man zunächst die Vorgänge für eine „Erde ohne Atmosphäre“, so erwärmt sich die Erdoberfläche durch Absorption von solarer Strahlung. Jeder Körper, dessen Temperatur über dem absoluten Nullpunkt der Temperatur von 0K liegt, strahlt Energie als sogenannter „grauer“ Strahler nach Maßgabe des Stefan-Boltzmann-Gesetzes in Form von thermischer Strahlung ab. Dieser Energieverlust läßt –isoliert betrachtet– die Tem-

peratur der Erdoberfläche absinken.

Nach dem Stefan-Boltzmann-Gesetz ist die Energieflussdichte der Ausstrahlung der Erde proportional zur vierten Potenz der Temperatur. Solange der Energiefluss in das „System Erde“ größer ist als der Energieabfluss durch langwellige Strahlung, erwärmt sich die Erde, bis sich bei der Gleichgewichtstemperatur T_G ein Gleichgewichtszustand zwischen Strahlungsabsorption und Ausstrahlung eingestellt hat. Folgende Gleichung beschreibt dieses Gleichgewicht für eine „Erde ohne Atmosphäre“.

$$\frac{E_{\text{Sonne}}}{4}(1 - \omega_{\text{pl}}) = \sigma_{\text{SB}}T_G^4 \quad (1.1)$$

ω_{pl} =planetare Albedo⁷ $\approx 0,3$

σ_{SB} = Stefan-Boltzmann-Konstante = $5,67 \times 10^{-8} \text{ Wm}^{-2}$

E_{Sonne} = Solarkonstante = 1379 Wm^{-2}

T_G =Gleichgewichtstemperatur [K]

Löst man die Gleichung 1.1 nach T_G auf, so lässt sich mit den oben genannten Werten die Gleichgewichtstemperatur zu $T_G=255,42 \text{ K} \equiv -17,73^\circ\text{C}$ berechnen.

Das Vorhandensein einer Atmosphäre verändert nun die Strahlungsbilanz am Erdboden. Wie in Abbildung 1.1 auf der nächsten Seite zu sehen ist, wird Strahlung an Wolken, Gasen und Partikeln gestreut und in ihnen absorbiert. Ca. 25% der einfallenden solaren Strahlung wird innerhalb der Atmosphäre in Wolken, Staub und Gasen absorbiert, ca. 47% werden am Erdboden absorbiert und 28% gelangen durch Reflektion wieder in den Weltraum. Im langwelligen Spektralbereich wird die terrestrische Ausstrahlung, die bei einer globalen Mitteltemperatur von derzeit 15°C ca. 114% der einfallenden solaren Strahlung beträgt, durch die atmosphärische Gegenstrahlung zu einem großen Teil kompensiert, so dass sich eine Nettoausstrahlung von lediglich 18% ergibt. Die Strahlungsbilanz am Erdboden ist mit einer Nettoabsorption von 29% nicht ausgeglichen, was zu einer weiteren Erwärmung der Oberfläche führen würde, wenn die Energiebilanz nicht durch den Fluss von latenter und sensibler Wärme vom Erdboden in die Atmosphäre ausgeglichen würde.

Die in Abbildung 1.1 gezeigten Energieflüsse und das damit verbundene Gleichgewicht werden nun vom Menschen gestört: Sogenannte Treibhausgase wie CO_2 , CH_4 , N_2O , O_3 und die teil- sowie vollhalogenierten Kohlenwasserstoffe absorbieren Strahlung u.a. im Spektralbereich zwischen 8 und $15\mu\text{m}$. Dieser Wellenlängenbereich wird auch das „atmosphärische Fenster“ oder das „Wasserdampf-fenster“ genannt, da die terrestrische Strahlung in diesem Spektralbereich nicht

⁷Der hier verwendete Werte der planetaren Albedo beinhaltet neben der Erdoberfläche auch die atmosphärische Albedo unter gegenwärtigen Bedingungen.

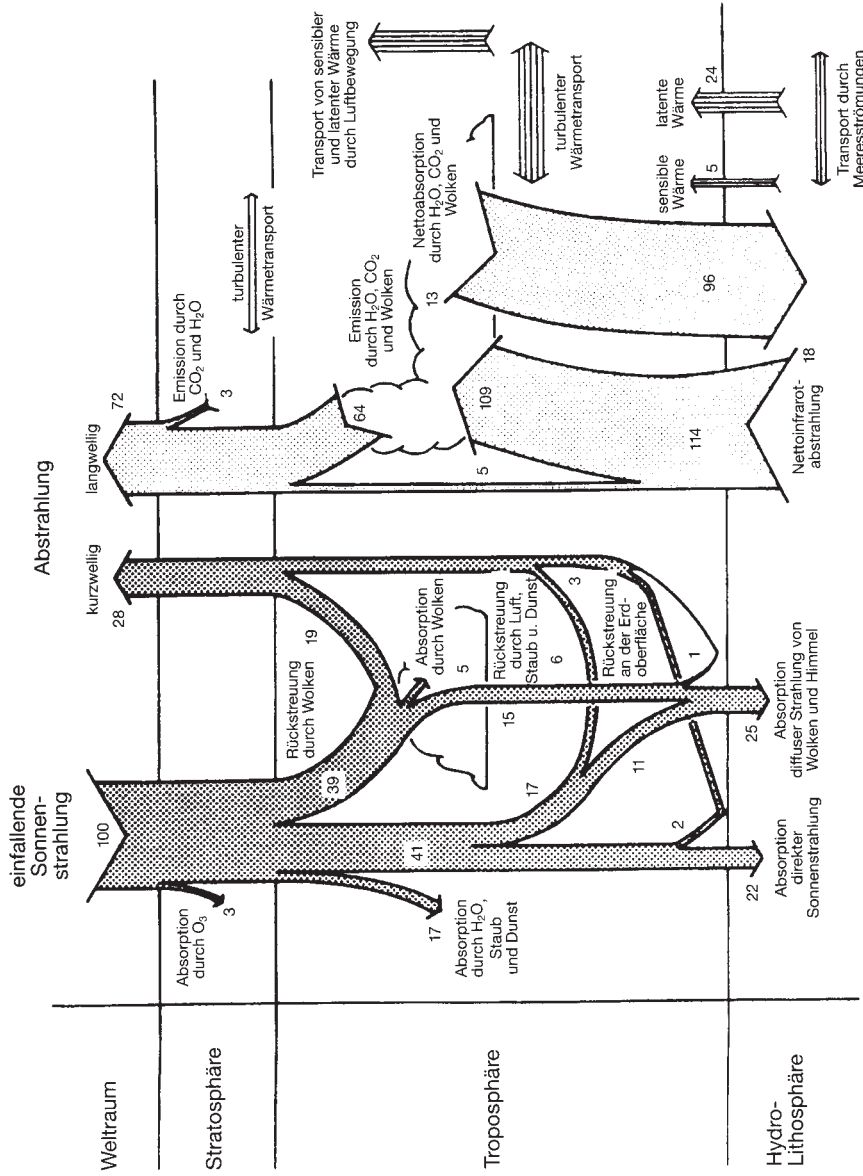


Abbildung 1.1: Die jährliche mittlere globale Energiebilanz für das System Erde – Atmosphäre. Zahlenwerte geben den relativen Anteil der einzelnen Energieflüsse in Prozent der einfallenden Energie durch solare Strahlung (=100%) an. Abbildung aus [Graedel & Crutzen, 1994].

vollständig von dem wichtigsten natürlichen Treibhausgas – dem Wasserdampf – absorbiert wird. Die zusätzliche Absorption von Strahlung in diesem Spektralbereich, bedingt durch die anthropogene Emission von Treibhausgasen, führt so zu einer Klimaveränderung. Neben den Treibhausgasen streuen und absorbieren aber auch anthropogene Partikel die Strahlung und beeinflussen somit über die Strahlungsbilanz ebenfalls das Klima.

Um diese Veränderung im Gleichgewichtszustand des Strahlungshaushaltes der Erde durch externe Faktoren – wie z.B. die Emission von anthropogenen Treibhausgasen – beschreiben zu können, wurde der Begriff des Strahlungsantriebes eingeführt. Die IPCC-Kommission der Vereinten Nationen⁸ definiert den synonymen Begriff „radiative forcing“ wie folgt [IPCC, 1990, 1992, 1994, 1996, 2001]:

*„Der **Strahlungsantrieb** (radiative forcing) des Oberflächen-Troposphärensystems, der durch Störung der Konzentration einer Substanz (z.B. durch die Veränderung der Treibhausgaskonzentrationen) hervorgerufen wird, ist definiert als die Veränderung des Nettostrahlungsflusses⁹ ΔF_R im kurz- und langwelligen Spektralbereich an der Tropopause, bei konstant gehaltener Oberflächen- und Troposphärentemperatur (Temperaturen des ungestörten Zustands), aber nachdem die Stratosphärentemperatur sich der veränderten Strahlungsbilanz angepasst hat.“*

Diese Definition wurde speziell an den Bedürfnissen von Klimamodellierern ausgerichtet. Eine eher an der Physik ausgerichtete Definition liefert Graedel & Crutzen [1994]: „**Strahlungsantrieb**: Die Störung der Strahlungsbilanz der Erde am Oberrand der Atmosphäre oder an der Tropopause durch Zunahme der Konzentration eines Treibhausgases, Änderung der Bewölkung, des Aerosols und der Solarkonstante (vor Einstellung eines neuen Gleichgewichts der Temperaturen an der Erdoberfläche)“

Modellrechnungen zeigen nun, dass die Änderung der mittleren globalen Oberflächentemperatur $\Delta \bar{T}_S$ in erster Näherung proportional zum global gemittelten Strahlungsantrieb an der Tropopause ist [Seinfeld & Pandis, 1998].

$$\Delta \bar{T}_S = \lambda_{cs} \Delta \bar{F}_R \quad (1.2)$$

$\Delta \bar{T}_S$ = Änderung der mittleren globalen Oberflächentemperatur

λ_{cs} = Klimasensitivitätsparameter $\approx 0,5 \pm 25\% \left[\frac{K}{Wm^{-2}} \right]$ laut IPCC [2001]

$\Delta \bar{F}_R$ = Strahlungsantrieb an der Tropopause, global gemittelt

Berechnungen mit einem allgemeinen Zirkulationsmodell der Atmosphäre (AGCM)¹⁰ zeigen je nach verwendetem Rückkopplungseffekt durch Wol-

⁸IPCC: Intergovernmental Panel on Climate Change (UN)

⁹Nettostrahlungsfluss: Differenz von abwärts- minus aufwärtsgerichtetem Strahlungsfluss

¹⁰AGCM: Atmospheric General Circulation Model

Antriebsmechanismus	ΔT_0 [K]	ΔF_R [Wm ⁻²]	λ_{cs} [$\frac{K}{Wm^{-2}}$]
CO ₂ 300 ... 600 ppm	1,31	4,35	0,30
CH ₄ 0,28 ... 0,56 ppm	0,16	0,52	0,30
N ₂ O 0,16 ... 0,32 ppm	0,27	0,92	0,30
CFC-11 0 ... 1 ppb	0,07	0,22	0,30
CFC 12 0 ... 1 ppb	0,08	0,28	0,30
O ₃ 50% Reduktion in allen Höhengschichten	-0,38	-1,23	0,31
Solarkonstante +2% bei allen Wellenlängen	1,35	4,58	0,30
Stratosphärisches Aerosol $\tau = 0,15$	-0,99	-3,30	0,30

Tabelle 1.1: Änderungen der Erdbodentemperatur für verschiedene Strahlungsantriebsmechanismen und Szenarien. Außerdem angegeben ist der Strahlungsantrieb der Tropopause (ΔF_R) und der Klimasensitivitätsparameter (λ_{cs}). Tabelle nach *Seinfeld & Pandis* [1998]

ken¹¹ einen möglichen Wertebereich des Klimasensitivitätsparameters λ_{cs} im Bereich zwischen 0,3 ... 1,4. Der Wert 0,3 des Klimasensitivitätsparameters entspricht hierbei der Situation ohne Rückkopplung, also für den Fall, dass sich im Modell die optischen Eigenschaften der Wolken und insbesondere auch der Wolkenbedeckungsgrad nicht im neuen Gleichgewichtszustand verändern.

Tabelle 1.1 zeigt die möglichen Reaktionen der Oberflächentemperatur für verschiedene Szenarien. Die Rechnungen wurden mit einem eindimensionalen Strahlungstransportmodell ohne Rückkopplungen im Klimasystem durchgeführt ($\lambda_{cs}=0,3$) [*Seinfeld & Pandis*, 1998].

Im kürzlich veröffentlichten IPCC Bericht [*IPCC*, 2001] wird λ_{cs} mit einem Mittelwert –ohne Rückkopplungseffekte auf Wolken– von 0,5 und einer Unsicherheit von $\pm 25\%$ angegeben. Mit Hilfe der paläoklimatologischen Rekonstruktion des Klimas aus Eiskernmessungen ergibt sich der Klimasensitivitätsparameter $\lambda_{cs} = \frac{\Delta T}{\Delta F_R} = \frac{5[K]}{7,1[Wm^{-2}]} = 0,7 \left[\frac{K}{Wm^{-2}} \right]$ aus dem Vergleich zwischen Glazial- und Interglazial-Perioden [*Seinfeld & Pandis*, 1998]. Als Beobachtungswert schließt dieser Wert alle möglichen Rückkopplungseffekte ein. Anhand der großen Unsicherheiten und der beobachteten Variabilität des Klimasensitivitätsparameters in Abhängigkeit von den verschiedenen Rückkopplungseffekten wird deutlich, dass man Gleichung 1.2 nur als grobe Näherung zur Abschätzung der Auswirkungen der verschiedenen Strahlungsantriebe auf die mittlere globale Oberflächentemperatur verwenden sollte.

Laut *IPCC* [2001] beträgt zur Zeit (Referenzjahr 1998) der durch anthropogene Treibhausgase hervorgerufene Strahlungsantrieb ca. $+2,43 \text{ Wm}^{-2}$ gegenüber dem Bezugsjahr 1750; dies entspricht bei $\lambda_{cs}=0,5 \left[\frac{K}{Wm^{-2}} \right]$ einer mittleren Erwär-

¹¹vgl. hierzu Kapitel 1.3.1

mung der Erdoberfläche von $1,22 \pm 0,3\text{K}$.

Diese Störung der Gleichgewichtstemperatur – man spricht hier von dem anthropogenen Treibhauseffekt – ist im Vergleich zum natürlichen Treibhauseffekt gering ($< 4\%$). Die Auswirkungen einer solchen Störung in einem komplexen System wie dem des Systems Erde – Atmosphäre sind jedoch nur sehr schwer zu berechnen. Numerisch instabile, nichtlineare Rückkopplungen innerhalb des Systems (z.B. die Veränderung des Wolkenbedeckungsgrades), zwingen den Modellierer, die physikalischen und chemischen Vorgänge in der Atmosphäre möglichst exakt in den Modellen zu parametrisieren. Viele Prozesse, insbesondere die Rolle des Ozeans als Senke für Spurenstoffe und seine Rolle als Energiereservoir, sind noch nicht ausreichend verstanden. Die atmosphärischen Aerosolpartikel sind als wichtige Einflussgröße zur Zeit immer noch nicht befriedigend in Klimamodellen berücksichtigt. Die Anzahlkonzentration und die Zusammensetzung der Aerosolpartikel ist sowohl räumlich als auch zeitlich hochvariabel. Der Strahlungsantrieb durch Partikel ist laut IPCC [2001] mit 0 bis -2 Wm^{-2} (erster indirekter Effekt) vergleichbar mit dem Strahlungsantrieb durch Treibhausgase, allerdings mit entgegengesetzter, abkühlender Wirkung. Die IPCC-Kommission schätzt den „Grad des wissenschaftlichen Verständnisses“ (Level of scientific understanding) der Wirkung des Aerosols auf das Klimasystem als „sehr gering“ ein. Es besteht also ein erheblicher Forschungsbedarf auf dem in dieser Arbeit behandelten Gebiet der Aerosolphysik. Die Wirkungsmechanismen des so genannten „direkten-“ und „indirekten Effekts“ des Aerosols auf das Klimasystem werden in den nachfolgenden zwei Sektionen dargestellt.

1.3 Aerosolpartikel & Klima

1.3.1 Indirekter Effekt

Aerosolpartikel wirken in der Atmosphäre als Wolken-Kondensationskerne (CCN Cloud Condensation Nuclei). Ohne Kondensationskerne gäbe es in der Atmosphäre keine Wolken in der uns bekannten Form, da die homogene Nukleation von Wasserdampf nur bei extrem hohen Übersättigungen der Luft mit Wasserdampf die sich zufällig bildenden, sehr kleinen primären Wassermolekülcluster erhält und weiter wachsen lässt [Young, 1993]. Wolken beeinflussen unser Klima auf sehr verschiedene Art und Weise. Wolken streuen und absorbieren kurzwellige Sonnenstrahlung und absorbieren und emittieren langwellige Strahlung sehr effektiv (vgl. Abbildung 1.1 auf Seite 9). Sie setzen beim Kondensationsprozess latente Wärme frei und transportieren somit sowohl Feuchtigkeit als auch Wärme vom Erdboden in die Atmosphäre. Zudem gäbe es ohne Wolken auch keinen Niederschlag. Im Mittel bedecken Wolken rund 50 % der Erdoberfläche und be-

stimmen somit zur Hälfte auch die planetare Albedo [Salby, 1996].

Der Einfluss der Wolken auf die globale Energiebilanz kann aus dem Vergleich der Strahlungsflüsse am Oberrand einer Modell-Atmosphäre mit und ohne Wolken quantitativ bestimmt werden. Nach Salby [1996] wird folgender Ansatz gewählt: Die über eine vertikale Luftsäule integrierte Volumenabsorptionsrate \dot{Q} über der Region \mathcal{R} ist gleich der Differenz von absorbierter und emittierter Strahlungsenergie.

$$\begin{aligned}\dot{Q} &= \int_0^{\infty} \rho \dot{q} dz \\ &= (1 - \omega_A) F_s - F_{\text{LW}}\end{aligned}\quad (1.3)$$

Hierbei bezeichnet \dot{q} die spezifische Volumenabsorptionsrate, ω_A die planetare Albedo der Region \mathcal{R} und F_s bzw. F_{LW} die abwärts gerichtete kurzwellige Strahlungsflussdichte bzw. die aufwärtsgerichtete langwellige Strahlungsflussdichte am Oberrand der Atmosphäre. Für den Strahlungsantrieb durch die Wolke (CRF) gilt:

$$\begin{aligned}CRF &= \dot{Q} - \dot{Q}^{\text{CS}} \\ &= \underbrace{(\omega_A^{\text{CS}} - \omega_A) F_s}_{\text{SCRF}} + \underbrace{(F_{\text{LW}}^{\text{CS}} - F_{\text{LW}})}_{\text{ICRF}}\end{aligned}\quad (1.4)$$

Der Index „CS“ kennzeichnet die Bedingung „ohne Wolken“ (clear sky). Man unterscheidet hierbei den Strahlungsantrieb durch Wolken im kurzwelligen (SCRF) und langwelligen (ICRF) Spektralbereich. Ist die Region \mathcal{R} nur mit dem Flächenanteil f_{cc} mit Wolken bedeckt, so folgt: (Der Index „OC“ kennzeichnet die Bedingung „8/8 Bewölkung“ (overcast))

$$\begin{aligned}SCRF &= f_{cc} (F_{\text{SW}}^{\text{CS}} - F_{\text{SW}}^{\text{OC}}) \\ &= f_{cc} F_s (\omega_{\mathcal{R}}^{\text{CS}} - \omega_{\mathcal{R}}^{\text{OC}}) \\ ICRF &= f_{cc} (F_{\text{LW}}^{\text{CS}} - F_{\text{LW}}^{\text{OC}})\end{aligned}\quad (1.5)$$

Der kurzwellige und langwellige Anteil des Strahlungsantriebes durch Wolken kann nun mit den Gleichungen 1.5 unter Verwendung von Breitbandsatellitenmessungen der kurz- (F_{SW}) und langwelligen (F_{LW}) Strahlungsflussdichten mit (Index „OC“) und ohne Wolken (Index „CS“) berechnet werden.

Ob nun eine Wolke einen positiven oder negativen Strahlungsantrieb aufweist, hängt davon ab, ob die planetare Albedo der Region \mathcal{R} mit Wolken ($\omega_{\mathcal{R}}^{\text{OC}}$) größer oder kleiner als die planetare Albedo ohne Wolken ($\omega_{\mathcal{R}}^{\text{CS}}$) ist. Normalerweise ist

der SCRF negativ, hat also einen kühlenden Effekt. Im globalen Mittel beträgt der SCRF ca. -50 Wm^{-2} [Ghan, 1996] mit einem Wertebereich von $(-140 \dots + 30 \text{ Wm}^{-2})$. Der SCRF kann allerdings auch positiv werden. Dies ist z.B. für optisch dünne Wolken über einer Schneedecke der Fall. Eine optisch dünne Wolke hat nach Abbildung 1.2 bei einer Wellenlänge von $\lambda = 0,5 \mu\text{m}$ und einer optischen Dicke der Wolke von $\tau_c=20$ eine Albedo von ca. $\omega_C=0,5$, wohingegen Schnee eine Albedo von $0,90 \dots 0,99$ besitzt.

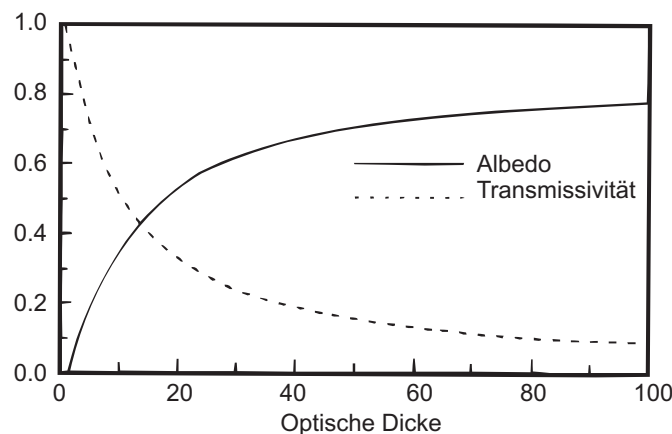


Abbildung 1.2: Albedo einer Wolke in Abhängigkeit von ihrer optischen Dicke bei einem Zenitwinkel der Sonne von $\theta_{\text{Sonne}}=0^\circ$; $\lambda = 0,5 \mu\text{m}$; Abbildung nach Salby [1996]

Der Strahlungsantrieb der Wolken im langwelligen Spektralbereich ICRF wird nach Gleichung 1.5 unter Berücksichtigung des Stefan-Boltzmann-Gesetzes hauptsächlich durch die Temperaturdifferenz zwischen Wolkenobergrenze und Erdboden bestimmt. Da Wolken normalerweise kälter als der Erdboden sind, ist im langwelligen Spektralbereich der Strahlungsantrieb durch Wolken positiv und beträgt im Mittel ca. $+30 \text{ Wm}^{-2}$ (Wertebereich: $0 \dots 100 \text{ Wm}^{-2}$) [Ghan, 1996].

In der Atmosphäre sind für die Wolkenentstehung immer genügend Aerosolpartikel vorhanden. Die mikrophysikalischen und optischen Eigenschaften der Wolke hängen allerdings stark von der CCN-Konzentration ab. So verteilt sich bei höherer CCN-Konzentration die gleiche Flüssigwassermenge auf mehr Tropfen mit dem entsprechend kleineren Radien. Radke *et al.* [1989] zeigte den Einfluss von anthropogenen Partikelemissionen auf Wolken entlang von Schiffsrouten. Hiernach führen über dem Meer zusätzliche Partikelemissionen zu einer drastischen CCN-Konzentrationserhöhung von 100 CCN/cm^3 auf $1000 \dots 4000 \text{ CCN/cm}^3$. Viele kleine Tropfen streuen das Licht effektiver als wenige große Tropfen. Bei gleichem Flüssigwassergehalt \mathcal{W} bedeutet dies, dass eine Wolke mit vielen kleinen Wolkentropfen eine höhere Albedo (vgl. Gleichung 1.6 auf der nächsten Seite [Ghan, 1996]) und eine größere optische Dicke besitzt als eine

Wolke mit weniger, dafür aber größeren Tropfen *Ghan* [1996]).

$$\omega_c \simeq \frac{\mathcal{W}}{\mathcal{W} + 5\rho_W r_{CD}} \quad (1.6)$$

ω_c = Albedo der Wolke im kurzwelligen Spektralbereich

\mathcal{W} = Masse des in einer vertikalen Säule in der Wolke kondensierten Wassers pro Einheitsfläche

ρ_W = Dichte des Wassers

r_{CD} = Radius der Wolkentropfen

Wolken aus kleinen Tropfen neigen auch weniger zur Niederschlagsbildung. Ihre durchschnittliche Lebenszeit in der Atmosphäre ist somit länger, was global gesehen bei gleichbleibender Wolkenbildungsrate einen Anstieg des Wolkenbedeckungsgrades zur Folge hat.

Twomey [1993] unterscheidet demzufolge zwei klimarelevante Effekte der Partikel:

1. Einfluss der Partikel auf die optischen Eigenschaften (optische Dicke und Albedo) der Wolken bei konstantem Flüssigwassergehalt : „erster indirekter Effekt“ oder auch „Twomey Effekt“ genannt
2. Einfluss der Partikel auf den Wolkenbedeckungsgrad und den Flüssigwassergehalt: „zweiter indirekter Effekt“

Der anthropogene Strahlungsantrieb durch Wolken wird derzeit im Bereich von ca. $0 \dots -2,0 \text{ Wm}^{-2}$ abgeschätzt. Der Wertebereich spiegelt die Unsicherheiten bei der Berechnung mit verschiedenen GCM-Modellen wieder. Viele für die korrekte Beschreibung notwendigen Prozesse sind nach Art und Umfang noch nicht richtig verstanden und somit auch nicht richtig quantifizierbar [*IPCC*, 2001].

1.3.2 Direkter Effekt

Aerosolpartikel interagieren mit dem Strahlungsfeld in der Atmosphäre, indem sie einfallende Strahlung streuen und absorbieren. (vgl. Abbildung 1.1) Je nach Untergrundbeschaffenheit und je nachdem wie die Partikel kurzwellige Strahlung streuen und absorbieren, erhöhen oder verringern sie die planetare Albedo der Erde. Analog zum CRF des indirekten Effektes wird auch beim „direkten Effekt“ der Strahlungsantrieb – DRF (Direct Radiative Forcing) eingeführt. Im Folgenden wird eine planparallele Modellatmosphäre über einer homogenen Erdoberfläche der Albedo ω_s betrachtet. Die Atmosphäre bestehe aus einer dünnen Aerosolschicht der optischen Dicke τ und einer darüber liegenden Atmosphäre, in der

sich Wolken befinden. Der Wolkenbedeckungsgrad sei gleich f_{cc} und der Erdboden habe die Albedo ω_s . Zum DRF trage nur der Teil $(1 - f_{cc})$ der Atmosphäre bei, der nicht von Wolken bedeckt ist. Unter diesen Annahmen gilt für das DRF am Oberrand der Atmosphäre : (Herleitung s. *Seinfeld & Pandis* [1998])

$$\begin{aligned} \text{DRF} &= -\mu_S E_{\text{Sonne}} \Delta\omega_{pl} \\ &= -\mu_S E_{\text{Sonne}} (1 - f_{cc}) \text{Tr}_A^2 \left[\underbrace{\left(R_{\uparrow} + \frac{T_{\downarrow}^2 * \omega_s}{1 - R_{\uparrow} \omega_s} \right)}_{\omega_{as}} - \omega_s \right] \end{aligned} \quad (1.7)$$

$\Delta\omega_{pl}$ = Änderung der planetaren Albedo: hier durch Partikel

Tr_A = Anteil, der in der oberhalb der Aerosolschicht liegenden Atmosphäre transmittierten und gestreuten Strahlung

ω = Single Scattering Albedo der Partikel

ω_s = Erdbodenalbedo

τ = optische Dicke der Partikel

β = nach oben gerichteter Rückstreuanteil der Strahlung an Partikel

$R_{\uparrow} = (1 - \exp(-\tau))\omega\beta$ = Anteil, der von den Partikeln nach oben reflektierten Strahlung

$T_{\downarrow} = \exp(-\tau) + \omega(1 - \beta)(1 - \exp(-\tau))$ = Anteil, der von den Partikeln total nach unten transmittierten und gestreuten Strahlung

ω_{as} = Albedo des System bestehend aus Aerosolschicht und Erdoberfläche

$\mu_s = \cos \theta_{\text{Sonne}}$ Zenitparameter der Sonne

θ_{Sonne} = Zenitwinkel der Sonne

Der Strahlungsantrieb der Aerosolschicht ist offensichtlich positiv, wenn die Albedo ω_{as} des Systems Aerosolschicht+Erdboden kleiner als die Erdbodenalbedo ω_s ist. Wie man auf vielen Satellitenbildern sehen kann, zeigt sich ein Sandsturm, der von der Sahara hinaus auf den freien Atlantik weht, über dem Land als ein dunkler Schatten. Über dem dunklen Ozean jedoch zeichnet er sich deutlich als helle Wolke ab. Diese Beobachtung verdeutlicht die in Gleichung 1.7 beschriebene Abhängigkeit des DRF von der Erdbodenalbedo. Berechnungen des DRF aus Messungen der spektralen Bestrahlungsstärken an wolkenfreien Tagen in Sagres (Portugal) [*Vitale et al.*, 2000] zeigen so eindrucksvoll, wie der gleiche Aerosoltyp über Land zu einem im Mittel positiven (erwärmenden) Strahlungsantrieb von $\{-1, 2 \dots + 9, 2\} \text{ Wm}^{-2}$ und über dem Meer zu einem negativen (abkühlenden) Strahlungsantrieb von $\{-3, 1 \dots - 13, 7\} \text{ Wm}^{-2}$ bei einem Sonnenzenitwinkel $\theta_{\text{Sonne}}=0,15^\circ$ führt.

Eine zusätzliche Komplikation ist durch die Abhängigkeit von β und ω_s vom Sonnenzenitwinkel θ_{Sonne} gegeben. In prognostischen Klimamodellen müssen zudem Änderungen der Erdbodenalbedo durch jahreszeitliche Änderungen, sowie beispielsweise Änderungen des natürlichen Bestandes an Pflanzen oder auch durch Nutzungsänderungen des Menschen bei einem veränderten Klima berücksichtigt (parametrisiert) werden. Dieses Beispiel zeigt zwei der zahlreichen so genannten Rückkopplungsmechanismen im Klimasystem. Auf dem Gebiet der Rückkopplungsmechanismen besteht zur Zeit noch ein großer Forschungsbedarf.

Der Strahlungsantrieb DRF der Aerosolschicht ist nun (vgl. Gleichung 1.7) offensichtlich gleich null, wenn gilt: $\omega_{as} = \omega_s$. Dies ist bei der kritischen Single Scattering Albedo (ω_{krit}) der Partikel der Fall. Für kleine optische Dicken der Aerosolschicht ¹² ($\tau \ll 1$) mit der Näherung $(1 - \exp(\tau)) \simeq \tau$ folgt aus Gleichung 1.7 für die kritische Single Scattering Albedo der Partikel:

$$\omega_{\text{krit}} = \frac{2 * \omega_s}{2\omega_s + \beta(1 - \omega_s)^2} \quad (1.8)$$

Partikel mit dieser Single Scattering Albedo führen weder zu einer Erwärmung noch zu einer Abkühlung des Systems. Abbildung 1.3 auf Seite 19 zeigt für verschiedene Rückstreuanteile β diesen funktionalen Zusammenhang auf. Ein Punkt oberhalb der jeweiligen Kurve beschreibt eine Kombination von Erdbodenalbedo und Single Scattering Albedo der Partikel, die zu einer Abkühlung des Systems Erde – Atmosphäre führt. Ein Wertepaar unterhalb der Kurve führt hingegen zu einer Erwärmung.

Tabelle 1.2 auf der nächsten Seite zeigt abschließend eine Abschätzung des global und jährlich gemittelten Strahlungsantriebs für verschiedene Strahlungsantriebsmechanismen als Differenzwert zwischen dem Jahr 1750 und 2000 (Details und Berechnungsgrundlagen s. *IPCC* [2001] Abschnitt 6.13).

Die sehr großen Fehlerangaben von über 200-300% bei der Abschätzung des Strahlungsantriebs durch Partikel weisen nochmals auf den bestehenden großen Forschungsbedarf hin, der in nachfolgender Sektion formuliert werden soll.

1.3.3 Forschungsbedarf

Der Einfluss der Aerosolpartikel auf das System Erde – Atmosphäre ist noch weitgehend ungeklärt. Selbst 3D Modellrechnungen, wie die von *Kiehl et al.* [2000], stellen zur Zeit nur verbesserte Szenarienstudien dar [*IPCC*, 2001]. Dies liegt weniger an der Güte der verwendeten Modelle, als vielmehr am Umfang und Qualität der dem Modell zugrunde liegenden Aerosolparameter, die die physikalischen

¹²In der Atmosphäre ist dies mit üblicherweise beobachteten optischen Dicken von ca. 0,1 unter normalen Bedingungen immer der Fall.

Substanz	Strahlungsantrieb [Wm^{-2}]	Fehler [%]	Verhältnis NH/SH
Treibhausgase (gut durchmischt):			
gesamt	+2,43	10	1
CO ₂	+1,46		
CH ₄	+0,48		
N ₂ O	+0,15		
Halogenierte Kohlenwasserstoffe	+0,34		
stratosph. O ₃	-0,15	67	<1
troposphär. O ₃	+0,35	43	>1
Aerosolpartikel:			
Sulfat (direkt)	-0,4	200	≫1
Biomassenverbrennung (direkt)	-0,20	300	<1
Fossile Brennstoffe (BC)	+0,230	200	≫1
Fossile Brennstoffe (OC)	-0,10	300	≫1
mineralischer Staub	-0,60 bis +0,40		
indirekter Aerosoleffekt	0 bis -2,0		>1
Kondensstreifen	0,02	350	≫1
Oberflächenalbedo	-0,20	100	≫1
Sonnenaktivität	+0,30	67	1

Tabelle 1.2: Werte des global und jährlich gemittelten Strahlungsantriebs durch verschiedene klimawirksame Parameter. Die Werte bezeichnen die Veränderungen im Jahre 2000 gegenüber dem Referenzjahr 1750. In der letzten Spalte wird das Verhältnis des Strahlungsantriebs zwischen der Nordhemisphäre (NH) und der Südhemisphäre (SH) angegeben. BC=Schwarzer Kohlenstoff (black carbon); OC=organischer Kohlenstoff (organic carbon) Details und Berechnungsgrundlage s. *IPCC* [2001] Abschnitt 6.13.

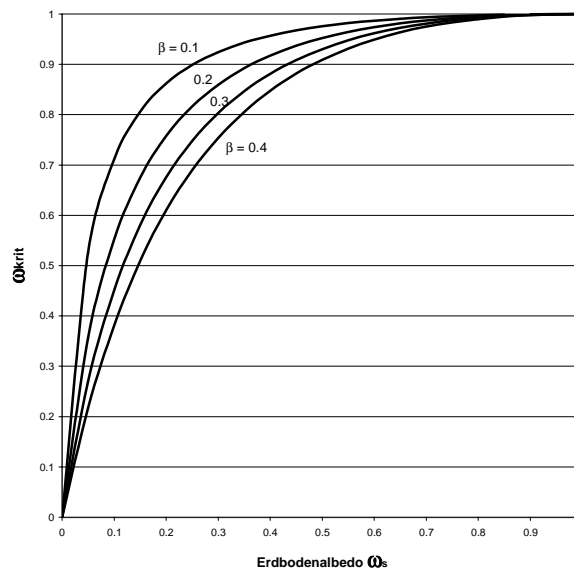


Abbildung 1.3: Kritische Single Scattering Albedo der Partikel (ω_{krit}) als Funktion der Erdbodenalbedo bei verschiedenen Rückstreuanteilen (β) der Partikel in den oberen Halb-raum.

Eigenschaften des Aerosols beschreiben und zeitlich und örtlich hoch variabel sind [IPCC, 2001]. Bedingt durch die hohe zeitliche und räumliche Variabilität, ist eine detaillierte Klimatologie der optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel notwendig, ohne die die Modellrechnungen eben nur Szenarienstudien darstellen. Eine solche Klimatologie ist zur Zeit aber noch nicht vorhanden. Eine Quantifizierung der Auswirkungen des von Schwartz [1996] eingeführten Begriffs des „Whitehouseeffektes“, der den anthropogenen und natürlichen, –global gesehen– kühlenden Einfluss der Aerosolpartikel auf das System Erde – Atmosphäre (analog zum erwärmenden „Greenhouse Effekt“ von Spurengasen) beschreibt, ist aus diesem Grund zur Zeit nicht mit der gebotenen Genauigkeit möglich. Auch die Frage, in welchem Umfang Absorption von Strahlung in bodennahen Partikeln lokal über dem Kontinent zu einem positiven Strahlungsantrieb führen kann, wie dies Auswertungen von Strahlungsmessungen von Komguem [1999] und Vitale et al. [2000] gezeigt haben und wie stark sich dieser Prozess global auswirkt, ist zur Zeit ebenfalls nicht geklärt.

Aber selbst wenn eine räumlich hochaufgelöste Momentaufnahme aller relevanter Partikeleigenschaften zur Verfügung stünde, wäre diese eben auch nur für diesen Augenblick gültig. Für prognostische Klimamodelle wäre sie trotzdem unzureichend, da sich bei veränderten Atmosphärenprozessen auch die Quellen und Senkenprozesse der Aerosolpartikel verändern. Aus diesem Grund kann man die große, zeitliche und räumliche Variabilität eigentlich nur durch eine dynami-

sche Modellierung der Quellen- und Senkenprozesse für Partikel, gekoppelt an ein GCM Modell für prognostische Klimamodelle, in den Griff bekommen. Leider beschreiben diese sehr komplexen Modelle (z.B. *Feichter et al.* [1996, 1997]; *Roelofs et al.* [1998]) noch nicht einmal den aktuellen Zustand der Atmosphäre befriedigend, so dass ihr Einsatz in Klimavorhersagen nicht in Frage kommt.

Für die Verbesserung dieser Modelle ist die Aufstellung einer Klimatologie der Partikeleigenschaften zwingend notwendig. Entsprechende Messungen mit Satelliten erscheinen hierbei am geeignetsten, da nur sie wirklich ein globales Bild auch der zeitlichen Variationen der Partikeleigenschaften entwerfen können. Leider bestimmen Satelliten wie NOAA/AVHRR [*Stowe et al.*, 1997], TOMS¹³/NIMBUS 7 [*Hsu et al.*, 1999] und POLDER¹⁴/ADEOS 1¹⁵ [*Herman et al.*, 1997] hauptsächlich die optische Dicke der Partikel in der Atmosphäre. Verlässliche Daten liefern diese Systeme zudem nur über dem Ozean. Über Land wird die Auswertung durch die stark variable Oberflächenalbedo erschwert. Eine Auswertung der Satellitendaten über Land wurde zunächst über Flächen dunkler, dichter Vegetation versucht [*Kaufman et al.*, 1997]. Eine bessere Analyse der optischen Dicke der Partikel über Land aus Satellitendaten sieht *Herman et al.* [1997] in der Messung und Auswertung der polarisierten Strahlung mit Hilfe des POLDER Satellitenexperiments. Er zeigte, dass polarisierte Strahlung wesentlich sensitiver gegenüber der Streuung an Partikeln im Vergleich zur Streuung an Vegetation und der Landoberfläche zu sein scheint. Zur Zeit wird die optische Dicke der Aerosolpartikel jedoch nur für die besonders stark polarisierenden, kleinen Partikel (z.B. Partikel aus der Biomassenverbrennung) richtig aus den Satellitendaten invertiert. Probleme zeigen sich insbesondere dann, wenn die Größenverteilung der Partikel nicht monomodal (log-normal) sondern bi- oder trimodal ist [*Deuzé et al.*, 2001].

Die, wie gezeigt, für den direkten Strahlungsantrieb der Partikel wichtige Single Scattering Albedo der Partikel, kann zur Zeit nur sehr eingeschränkt¹⁶ aus Satellitendaten berechnet (invertiert) werden.

Die ebenfalls wichtigen, chemischen und mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel – wie die chemische Zusammensetzung, der Aktivierungsparameter und die Größenverteilung (vgl. Kapitel 5.1 auf Seite 77, Teil III auf Seite 61) –, werden zur Zeit nicht oder nur ungenügend genau von Satellitenmessungen erfasst. Satellitengetragene aktive Fernerkundungsverfahren, wie das Lidar können an dieser Stelle eine Verbesserung bringen [*IPCC*, 2001].

In situ Messungen am Boden und mit Flugzeugen liefern das genaueste Bild

¹³TOMS :Total Ozone Mapping Spectrometer

¹⁴POLDER :Polarisation and Directionality of the Earth's Reflectances

¹⁵ADEOS :Advanced Earth Observing Satellite

¹⁶Es wird eine gamma-verteilte Aerosolgrößenverteilung angenommen. Eine Auswertung ist nur über Land möglich.

der mikrophysikalischen, chemischen und optischen Partikeleigenschaften. Diese Messungen von Aerosolparametern sind aufgrund des hohen personellen wie logistischen Aufwandes zumeist nur in speziellen Messkampagnen (z.B. LACE 98, TARFOX¹⁷, ACE1, ACE2¹⁸, INDOEX¹⁹ [Ansmann et al., 2002; Bates et al., 1998; Raes et al., 2000; Russel et al., 1999]) oder an wenigen permanenten Stationen z.B. GAW²⁰-Station Mace Head (Jennings et al. [1991]) möglich. Ziel sollte es also sein, Modelle und Satellitenmessungen an derartigen Messungen zu kalibrieren. Durch das Studium in der realen Umwelt müssen außerdem Rückkopplungsmechanismen untersucht und parametrisiert werden, die jetzige Modelle noch nicht oder nur ungenügend berücksichtigen. An dieser Stelle seien nur die Rückkopplungen des hydrologischen Zyklusses mit seinen Komponenten Niederschlag, Verdunstung, Wolken, Konvektion mit Landnutzungsänderungen, sowie die Rückkopplung von Wasserdampfgehalt und Temperatur, und nicht zuletzt die Rückkopplung von Wolken und Strahlung im Klimasystem genannt. An den Rückkopplungen sind auch geochemische Umwandlungsprozesse und Spurenstoffkreisläufe beteiligt (z.B. der Rückkopplungsprozess Kohlenstoffkreislauf–Treibhausgaskonzentration). Die Wirkung der atmosphärischen Partikel hierauf soll in der folgenden Sektion kurz betrachtet werden.

1.4 Aerosolpartikel & Spurenstoffkreisläufe

Aerosolpartikel sind als Bestandteile der Luft an vielen geochemischen Prozessen beteiligt. Wie schon in Sektion 1.3.1 auf Seite 12 beschrieben, beeinflussen Aerosolpartikel den hydrologischen Zyklus. Das Entstehen von Wolken und ihre mikrophysikalische Struktur (Tropfenspektren) ist eng an die Größenverteilung und die chemische Zusammensetzung der Partikel gebunden. Der hydrologische Kreislauf hat nun seinerseits eine große Bedeutung für viele andere Spurenstoffkreisläufe: Von den geochemischen Spurenstoff-Kreisläufen, die in der Atmosphäre Material in den partikelgebundenen Zustand überführen (z.B. $\text{SO}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{SO}_4$, $\text{NH}_3, \text{NO}_x \rightarrow \text{HNO}_3$, etc.) begrenzt der hydrologische Zyklus durch Auswaschen und -regnen die atmosphärische Lebenszeit der Endprodukte. Wolkentropfen besitzen eine große Oberfläche, die bei gleicher Flüssigwassermenge umso größer ist, je kleiner die Tropfen sind. Die Diffusion kleiner Partikeln mit Radien kleiner $0,1\mu\text{m}$ und von Gasen an die Oberfläche von Tropfen ist oberflächenproportional, so dass z.B. Nebel – mit sehr kleinen Tropfen mit Durchmessern von $1 - 20\mu\text{m}$ – sehr effektiv Schadstoffe und kleine Partikel aus

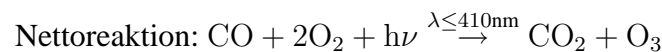
¹⁷**TARFOX:** Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational Experiment

¹⁸**ACE:** Aerosol Characterisation Experiment

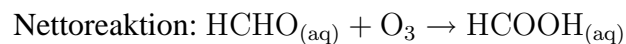
¹⁹**INDOEX:** Indian Ocean Experiment

²⁰

der Atmosphäre entfernt. Andererseits: In einer Wolke verändern sich auch die meisten chemischen Abläufe dadurch, dass Reaktionen in der Flüssigphase möglich sind. Insbesondere werden die stark wasserlöslichen freien Radikale wie das Hydroxylradikal $\text{OH}\bullet$ und das Peroxyradikal $\text{RO}_2\bullet$, sowie oxidierende Moleküle wie Formaldehyd (HCHO) oder Wasserstoffperoxyd (H_2O_2) aus der Gasphase entfernt. Gasphasenreaktionen wie z.B. die Ozonbildungsreaktion²¹,



die im Sommer zu Photosmog (erhöhte Ozonkonzentration in der Troposphäre) führt, kommen so zum Erliegen. Vielmehr zerstören nun Reaktionen in der Flüssigphase (aq für Aqua: lat. Wasser) dieses troposphärische Ozon unter Bildung von Ameisensäure [Graedel & Crutzen, 1994].



In der antarktischen Stratosphäre sind ferner heterogene Reaktionen an den Oberflächen von Partikeln an der Entstehung des antarktischen Ozonloches während des Südfrühlings über die Chloraktivierung aus Reservoirgasen beteiligt. Diese Partikel – es handelt sich hierbei um die so genannten Polaren-Stratosphärischen-Wolken (PSC Polar Stratospheric Clouds)– bilden sich im circumpolaren Vortex bei Temperaturen unter -80°C .²²

Neben ihrem Einfluss auf chemische Reaktionen darf nicht vergessen werden, dass auch ein erheblicher Massentransport in Form von Aerosolpartikeln erfolgt. So werden jährlich über $10.000\mu\text{gm}^{-2}$ mineralischer Partikel westlich der Sahara im Atlantik und ebensoviel östlich des Asiatischen Kontinents im Pazifik deponiert [Duce, 1991]. Durch Materialtransporte können z.B. durch vermehrten Eintrag von Stickstoffverbindungen marine, limnische aber auch terrestrische Ökosysteme zunehmend eutrophieren. In nährstoffarmen Gebieten kann es so durch die Zufuhr von einem Stoff, mit dem Pflanzen in dieser Region unterversorgt sind, zu einem starkem Pflanzenwachstum kommen [Schulz, 1998; Martin, 1994].

Schwefelsäure und Salpetersäure, gelöst im Regenwasser, führen als „saurer Regen“ zu einer Versauerung von Gewässern und Böden und so zu einer Schädigung von Pflanzen und Tieren.

²¹Von der Ozonbildungsreaktion soll hier nur die Nettoreaktion stellvertretend für ein komplexes Reaktionsschema genannt werden. Für eine genaue Darstellung dieses Reaktionsschemas, bei dem Radikale eine zentrale (katalytische) Rolle spielen, sei auf die Fachliteratur verwiesen (z.B. [Graedel & Crutzen, 1994]).

²²**Polare Stratosphärische Wolken:** Man unterscheidet 2 Typen: Typ I besteht aus Salpetersäure und Wasser, wahrscheinlich in Form von Salpetersäuretrihydratkristallen; PSC vom Typ I bilden sich in der untersten Stratosphäre bei Temperaturen unterhalb von etwa -80°C ; PSC vom Typ II bestehen aus Eiskristallen und bilden sich unterhalb einer Temperatur von -85°C [Graedel & Crutzen, 1994]

Die Auswirkungen, die ein zusätzlicher anthropogener Eintrag von Partikeln auf das komplexe Ökosystem hat und, welche Rückkopplungen dies wiederum auf das Klimasystem zur Folge hat, sind zur Zeit noch völlig unklar. Insgesamt gesehen erhalten jedoch Nährstofftransporte die Fruchtbarkeit der Umwelt, die beschriebenen negativen Folgen sind die Ausnahmen.

Abschließend soll betrachtet werden, welchen direkten Einfluss die Aerosolpartikel auf die Gesundheit des Menschen haben können.

1.5 Aerosole und Gesundheit

Aerosolpartikel können über die Atemwege ins Körperinnere des Menschen gelangen. Der größte Teil der Partikel, die größer als $10\mu\text{m}$ sind, wie z.B. Gräserpollen oder Staub, werden schon in der Nase oder im Nasen-Rachenraum (Nasopharynx) am weiteren Eindringen gehindert. Partikel bis zu $5\text{-}10\mu\text{m}$ erreichen die großen Atemwege, und nur Partikel mit einem Durchmesser von bis zu $1\text{-}2\mu\text{m}$ gelangen in die peripheren Atemwege und Alveolen. Treffen Partikel auf die Schleimhaut, die die Atemwege begrenzt, bleiben sie an ihr haften. Die Atemwege verfügen aus diesem Grund über einen effektiven Selbstreinigungsmechanismus (pulmonaler Abwehrmechanismus), der in mechanische (mukoziläre Selbstreinigung = pulmonale clearance, Abtransport der Partikel mit Hilfe des Flimmerepithels), zelluläre Faktoren (z.B. Aufnahme und Abtransport der Partikel von Alveolarmakrophagen) und humorale²³ Faktoren (z.B. Immunreaktion durch Anlagerung von Immunglobulin A an die Partikel und anschließender Abtransport) gegliedert werden kann. Viele Atemwegs- und Lungenerkrankungen entstehen durch Überforderung und Versagen dieser Selbstreinigungsmechanismen.

Für eine eingehendere Beschreibung der Anatomie und Physiologie der Atemwege sei hier nur auf Kapitel 7.1.1 auf Seite 150 verwiesen.

Viele Erkrankungen der Atemwege und der Lunge beginnen mit einer Entzündung, die durch die Inhalation, z.B. von mineralischen oder organischen Stäuben, aber auch von Allergenen verursacht wurden.²⁴ Bei der Pathogenese (Krankheitsentwicklung) spielt der Zigarettenrauch häufig eine zentrale Rolle.

Folgender Teufelskreis kann so zu einer **chronischen Bronchitis** (bronchiale Entzündung) führen. Eine Entzündung der Schleimhäute führt zur vermehrten Schleimsekretion (Dyskrenie), die das Versagen der mukozilären Selbstreinigung (pulmonale Clearance) bedingt. Immer wieder kehrende (rezidivierende) Infekte mit entsprechenden Entzündungsreaktionen sind die Folge und schließen den

²³**humoral:** die Körperflüssigkeiten betreffend [Hildebrand, 1998]

²⁴Die nachfolgende Beschreibung von Krankheitsbildern und deren Pathogenese wurde aus Lehrbüchern der inneren Medizin und der Pathologie (z.B. [Schettler & Greten, 1998; Renz-Polster & Braun, 1999; Grundmann, 1986]) entnommen.

Krankheitsbezeichnung	Allergene
Farmerlunge	thermophile Aktinomyzeten in schimmeligem Heu
Käsewäscherlunge	Penicillium frequentans, casei
Taubenzüchterlunge	Serumproteine von Tauben, Hühnern und Sittichen
Kürschnerlunge	Staub von Pelztierhaaren bei der Fellverarbeitung
Holzarbeiter- und Waldarbeiterlunge	Sägemehl von Eichen und Zedern

Tabelle 1.3: Häufige Allergene als Auslöser einer exogenen, also außerhalb des Körpers entstanden allergischen Alveolitis

Teufelskreis. In der Folge kommt es zur Zerstörung des Flimmerepithels mit Vernarbungen und teilweisem Umbau des Flimmerepithels in ein Plattenepithel, die für den chronischen Verlauf der Erkrankung verantwortlich sind.

Aber auch in der Lunge kann es durch die Einlagerung von Partikeln im Lungengewebe zu typischen Erkrankungen, den so genannten **Pneumokoniosen** kommen. Durch Speicherung von anorganischem Staub im Lungengewebe bedingte Lungenverwachsungen (Fibrose) führen meist zur Berufsunfähigkeit. Inhalierter Quarzkristalle (SiO_2) werden von den Alveolarmakrophagen im Zuge der zellulären Selbstreinigung der Alveolen aufgenommen. Diese sterben dabei ab und setzen neben dem Quarz auch Proteasen (Enzyme) und andere Stoffe frei, die zur Neubildung von Bindegewebe (Verwachsungen) führen (Silikose). Bei inhaliertem Asbeststaub kann es als Spätfolge, der sog. Asbestose, zum Plattenepithel- oder Adenokarzinom (Karzinom = bösartige Krebserkrankung) kommen. Ansonsten zeigen sich die gleichen Symptome wie bei der Silikose, allerdings entstehen nach Ende der Exposition von Asbest keine weiteren Verwachsungen mehr, wie dies bei der Silikose der Fall ist. Alle fibrogenen Lungenerkrankungen fasst man unter dem Begriff der **Interstitiellen Lungenerkrankungen** zusammen. Zu diesen gehört ebenfalls die **exogene allergische Alveolitis** (Hypersensitivitäts-Pneumonitis). Hierbei handelt es sich um eine allergische Reaktion des Immunsystems, verursacht durch die Inhalation organischer Stäube. Zahlreiche Berufserkrankungen – wie z.B. die „Farmerlunge“ (verursacht durch Schimmelpilze im Heu) – sind in diese Gruppe der Lungenerkrankungen einzuordnen. (vgl. hierzu auch Tabelle 1.3)

Treten allergische Reaktionen in den Bronchien auf, so spricht man auch vom **allergischen Asthma bronchiale**, das mit einer reversiblen Verengung (Obstruktion) der Bronchien einhergeht. Von 100 Patienten, die an allergischem Asthma leiden, zeigen 80 allergische Reaktionen gegen die Fäzes (Ausscheidungen) der Hausstaubmilben, 70 gegen Gräserpollen, 40 gegen Haustier-Epithelien (Hautpartikel) und 20 gegen Schimmelpilze/Schimmelsporen. Mit Durchmessern von $5\text{-}30\mu\text{m}$ erreichen diese Allergene hauptsächlich die großen Atemwege. Die Obstruktion der Bronchien wird durch eine entzündliche Schleimhautschwellung,

Kontraktion der glatten Bronchialmuskulatur (glattmuskuläre Bronchokonstriktion) sowie durch eine vermehrte Produktion von zähem Schleim verursacht.

Als letzte Kategorie sollen hier noch die **neoplastischen Lungenerkrankungen** genannt werden. Als wichtigste Erkrankung ist hier das Bronchialkarzinom zu nennen. Das Bronchialkarzinom ist der häufigste maligne (bösartige) Tumor, er bedingt rund 25% aller Krebstodesfälle. Hauptrisiko für die Entstehung eines Bronchialkarzinoms sind wiederum inhalative Schadstoffe (Noxen), insbesondere Zigarettenrauch. Männer sind z. Zt. noch deutlich häufiger als Frauen betroffen. Der Altersgipfel des Lungenkarzinoms liegt zwischen dem 55. und 65. Lebensjahr, nur 5% der Patienten sind jünger als 40 Jahre. Besonders tückisch ist das Fehlen von Frühsymptomen. Erst wenn der Tumor über die Organgrenzen hinaus gewachsen ist, treten spezifische Symptome auf, die zur Diagnosestellung führen.

Neben dem schon genannten Zigarettenrauch (nur 15% der betroffenen Patienten haben nie geraucht) stehen auch andere Schadstoffe im Verdacht, das Lungenkrebsrisiko zu erhöhen. Hierzu zählen vor allem Arbeitsstoffe wie Asbest, Arsen- und Chromverbindungen, Nickel, Polyzyklische Kohlenwasserstoffe (z.B. Benzopyren) oder auch radioaktive Stoffe. Polyzyklische Aromate sind u.a. an Diesel und Rußpartikel gebunden. Aus diesem Grund wurde durch Gesetzesauflagen die Gesamtmasse an Rußemissionen bei Dieselmotoren begrenzt. Die Autoindustrie kam dieser Auflage durch effektiver verbrennende Motoren nach. Hier entsteht bei höheren Temperaturen insgesamt weniger Masse an Ruß. Die Rußpartikel sind allerdings wesentlich kleiner, so dass die Anzahlkonzentration der Rußpartikel mit fatalen Folgen sogar steigt. Diese kleinen Rußpartikel gelangen auch in die peripheren Atemwege, bis hin zu den Alveolen. Im Gegensatz dazu wurden die früher, bei weniger effektiv verbrennenden Motoren zu beobachtenden große Rußflocken, schon in den oberen Atemwegen abgeschieden und durch die mukoziliäre Selbstreinigung auch wiederum schnell entfernt. Allgemein konnten epidemiologische Studien zeigen, dass die Anzahlkonzentration der Partikel, insbesondere der Fraktion kleiner $2,5\mu\text{m}$ mit der Mortalitätsrate gekoppelt ist [Dockery et al., 1993; Pope et al., 1995].

Neben der pathogenen Wirkung der Aerosolpartikel, kann man aber auch ihre Lungengängigkeit zur Heilung von Lungenerkrankungen nutzen. So werden Medikamente, wie das entzündungshemmende Cortison, z.B. an eine Pulvermatrix gebunden und über spezielle Inhalatoren appliziert. Über die Art und Größe der Partikel kann man so das Medikament an einen bestimmten Ort der Lunge gezielt platzieren und damit bei geringer Gesamtdosis einen maximalen Effekt an der betroffenen Stelle erreichen.

1.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wird die vorliegende Arbeit thematisch in die aktuellen Probleme und Fragestellungen der Aerosolphysik eingliedert. Ziel war es, dem Leser die Motivation zu dieser Arbeit anhand verschiedener Problemkreise innerhalb der Aerosolphysik näherzubringen. Es sollte verdeutlicht werden, dass Aerosolpartikel trotz ihres vergleichsweise geringen Masseanteils an den Spurenstoffen eine relativ zentrale Stellung bei vielen Prozessen innerhalb der Biosphäre einnehmen. Hierzu zählen die direkte und indirekte Wirkung der Partikel im Klimasystem, die Stellung der Aerosolpartikel bei Spurenstoffkreisläufen und nicht zuletzt die Wirkung der Aerosolpartikel auf die Gesundheit des Menschen.

Eine genaue Kenntnis der mikrophysikalischen, optischen und chemischen Eigenschaften der Partikel ist für eine quantitative Beschreibung ihrer Wirkung in der Biosphäre zwingend notwendig. Dem Leser wurde das Konzept vorgestellt, nach dem anhand von direkten und indirekten Vergleichen (Schließungen) die Konsistenz der während LACE 98 mit unterschiedlichen Verfahren vorgenommenen Messungen der physikalischen Eigenschaften der Partikel untersucht werden soll. Ferner wurde dargelegt, wie im Anschluss an die direkte und indirekte Schließung zunächst der Begriff der Schließung erweitert wird. Dabei werden auf der Grundlage des konsistenten LACE 98 -Datensatzes verschiedene Anwendungen in der Meteorologie (Energiebilanz der Atmosphäre, Wolkenphysik, Sedimentation von Partikeln) und der Medizin (Deposition von Partikeln in der menschlichen Lunge und deren Entfernung durch Selbstreinigungsmechanismen der Lunge) erprobt.

Im nun folgenden Kapitel werden zunächst die experimentellen Arbeiten und ihre methodischen Grundlagen vorgestellt. Sie sollen wiederum die Grundlage für die sich anschließende Schließung bilden.

Teil II

Experimentelle Arbeiten

Überblick

Voraussetzung für das Gelingen einer Schließung ist eine detaillierte Kenntnis der physikalischen Grundlagen, Annahmen und Voraussetzungen, die den beteiligten Messverfahren zu Grunde liegen. So müssen, um Messwerte miteinander vergleichen zu können, Annahmen und Voraussetzungen bei den unterschiedlichen Verfahren untereinander angeglichen werden. Auch die Frage, für welches Volumen und welches Zeitintervall die Messungen repräsentativ sind, muss geklärt werden. Ein Strahlungssensor (z.B. ein 2π Solarimeter), mit dem man die Strahlungsflussdichte bestimmt, die aus dem oberen Halbraum auf die Detektorebene einfällt, hat ein Probevolumen von einigen tausend Kubikkilometern. Filterproben zur Bestimmung der optischen Eigenschaften der Partikel mit dem Aerosolphotometer werden aus $16-40m^3$ Probevolumen in 6-12 Stunden gefiltert. Ein Nephelometer, mit dem man den Streukoeffizienten von Partikeln bestimmt, hat bei einem zeitlichen Mittelungsintervall von 15 Minuten nur ca. 15 Liter als Probevolumen. Diese großen Unterschiede müssen schon bei der Planung eines Schließungsexperimentes berücksichtigt werden. So könnte man mit Hilfe eines gemeinsamen Probenahmensystems Unterschiede im Probevolumen minimieren. Durch die Mischung und damit verbundene Homogenisierung eines großen Probevolumens wären dann auch Nephelometermessungen bei entsprechender zeitlicher Mittelung mit den Messungen des Aerosolphotometers vergleichbar. Sind solche Maßnahmen aus technischen Gründen nicht möglich, so muss man dies bei der Interpretation der Daten berücksichtigen. Aus diesem Grund werden in den folgenden zwei Kapiteln die an der Schließung beteiligten Messverfahren und deren physikalische Grundlagen vorgestellt.

Kapitel 2

Strahlung & optische Eigenschaften der Partikel

2.1 Grundlagen der Strahlungsübertragung

Die optischen Eigenschaften der Aerosolpartikel wirken sich, wie in der Einleitung beschrieben, über den direkten Effekt (vgl. Abschnitt 1.3.2 auf Seite 15) auf das Klima unserer Erde aus. Die Wechselwirkungen von Atmosphäre und Partikeln mit dem Strahlungsfeld werden mit Hilfe der Strahlungsübertragungsgleichung (SÜG) beschrieben. Die SÜG bilanziert die Veränderungen der spektralen Strahldichte¹ N_λ eines Strahls entlang einer differentiellen Wegstrecke ds in Strahlrichtung. Als Bilanzgleichung der spektralen Strahldichte vereint die SÜG die Quellen und Senkenprozesse der Strahlung in der Atmosphäre. Dies sind explizit die Strahlverstärkung infolge Streuung in den Strahl ($dN_{CS\lambda}$) und infolge Emission ($dN_{em\lambda}$), sowie die Strahlungsschwächung infolge Absorption ($dN_{a\lambda}$) und infolge Streuung aus dem Strahl ($dN_{sc\lambda}$).

$$dN_\lambda = \underbrace{dN_{a\lambda} + dN_{sc\lambda}}_{-N_\lambda d\tau_\lambda} + \underbrace{dN_{cs\lambda} + dN_{em\lambda}}_{Q_\lambda d\tau_\lambda} \quad (2.1)$$

N_λ =Spektrale Strahldichte

Q_λ =Spektrale Quellenstrahldichte

$d\tau_\lambda$ =differentielle spektrale optische Dicke

$dN_{a\lambda}$ =Schwächung der Strahldichte infolge Absorption

$dN_{sc\lambda}$ =Schwächung der Strahldichte infolge Streuung aus dem Strahl

¹Unter der **spektralen Strahldichte** versteht man die Strahlungsenergie im Wellenlängenintervall $\lambda, \lambda + d\lambda$, die aus dem Raumwinkelement $d\omega_R$ der Richtung $\vec{\omega}_R$ senkrecht ($\vec{n} \cdot \vec{\omega}_R dA$) durch ein Flächenelement dA mit der Flächennormalen \vec{n} pro Zeitintervall dt fließt.

$dN_{cs\lambda}$ =Verstärkung der Strahldichte infolge Streuung in den Strahl

$dN_{em\lambda}$ =Verstärkung der Strahldichte infolge Emission

Wie in Gleichung 2.1 auf der vorherigen Seite zu sehen ist, sind alle an der Schwächung oder Verstärkung der Strahldichte beteiligten Prozesse wellenlängenabhängig. Kennzeichnend wird dies durch den Wellenlängenindex λ . Bei der nachfolgenden Diskussion der einzelnen Quellen- und Senkenterme der SÜG, wird dieser spektrale Charakter implizit immer vorausgesetzt und nicht mehr gesondert erwähnt.

Die **Schwächung der Strahlung infolge Absorption und Streuung aus dem Strahl** folgt dem Beerschen Gesetz. In differentieller Form lautet es:

$$dN_{e\lambda} = dN_{a\lambda} + dN_{sc\lambda} = -N_{\lambda} \underbrace{(\sigma_{a\lambda} + \sigma_{s\lambda})}_{\sigma_{e\lambda}} ds \quad (2.2)$$

$\sigma_{a\lambda}$ =Absorptionskoeffizient

$\sigma_{s\lambda}$ =Streukoeffizient

$\sigma_{e\lambda}$ =Extinktionskoeffizient

Die Schwächungskoeffizienten verhalten sich additiv. So ist z.B. der Absorptionskoeffizient eines Gemisches von Substanzen durch die Summe der Absorptionskoeffizienten der einzelnen Substanzen j gegeben. Es gilt ganz allgemein:

$$\sigma_{X\lambda} = \sum_j \sigma_{Xj\lambda} \quad \forall X \in \{e, sc, a\} \quad (2.3)$$

Das Verhältnis von Streukoeffizient zu Extinktionskoeffizient bezeichnet man als Albedo bei Einfachstreuung (ω_{λ}). Gebräuchlicher ist jedoch die englische Bezeichnung Single Scattering Albedo für diese Größe.

$$\omega_{\lambda} = \frac{\sigma_{s\lambda}}{\sigma_{e\lambda}} \quad (2.4)$$

Als optische Dicke bezeichnet man das Integral des Extinktionskoeffizienten über die Wegstrecke s entlang des Strahls.

$$\tau_{\lambda} = \int \sigma_{e\lambda} ds \quad (2.5)$$

Als nächster Term der SÜG wird nun die **Verstärkung der Strahldichte durch Streuung in den Strahl** beschrieben.

$$dN_{cs\lambda} = \sigma_{e\lambda} Q_{sc\lambda} ds \quad (2.6)$$

Phasenfunktion	Beschreibung
$\phi_R = \frac{3}{4}(1 + \cos(\psi))$	Rayleigh Phasenfunktion für $\alpha_P \ll 1$ (z.B. Luftmoleküle bei solarer Strahlung)
$\phi_{HG} = \frac{1-g_\lambda^2}{1+g_\lambda \cos(\psi)^{\frac{3}{2}}}$	Henyey-Greenstein-Phasenfunktion für $\alpha_P \simeq 1$ (z.B. trockene Aerosolpartikel bei solarer Strahlung)
$\alpha_P = \frac{2\pi r_P}{\lambda}$	Größenparameter des Partikel
r_P	Radius des Partikel
g_λ	Asymmetrieparameter
ψ	Winkel zwischen einfallender und gestreuter Strahlung

Tabelle 2.1: Phasenfunktion der Volumenstreuung für unterschiedliche Größenparameter α_P

Hierbei bezeichnet $Q_{sc\lambda}$ die Quellenstrahldichte durch Streuung in den Strahl. Ist der Streukoeffizient unabhängig von der Einfallsrichtung $\vec{\omega}_{iR}$ und der Extinktionskoeffizient unabhängig von $\vec{\omega}_R$, so gilt:

$$Q_{sc\lambda} = \frac{\omega_\lambda}{4\pi \text{sr}} \int_{4\pi \text{sr}} \phi(\vec{\omega}_{iR}, \vec{\omega}_R, \lambda) N_{i\lambda} d\omega_{iR} \quad (2.7)$$

Hierbei beschreibt die Phasenfunktion der Volumenstreuung $\phi(\vec{\omega}_{iR}, \vec{\omega}_R, \lambda)$ den Anteil der in ein Raumwinkelement $d\omega_R$ in Richtung $\vec{\omega}_R$ gestreuten Strahlung an der gesamt gestreuten Strahlung. Die einfallende Strahlung fällt bei dieser Betrachtungsweise aus einem Raumwinkelement aus Richtung $\vec{\omega}_{iR}$ ein. Die Quellenstrahldichte ergibt sich dann durch Integration über alle Einfallsrichtungen. Die Form der Phasenfunktion der Volumenstreuung ist im Wesentlichen abhängig von dem Größenparameter α_P , der die Größe des streuenden Teilchens (Mediums) im Verhältnis zur betrachteten Wellenlänge des Lichtes beschreibt.

Der letzten Term der SÜG beschreibt die **Strahlverstärkung durch Emission**. Analog zur Strahlverstärkung durch Streuung in den Strahl wird auch hier eine Quellenstrahldichte der Emission Q_{em} eingeführt. Ist sowohl der Absorptionskoeffizient als auch der Extinktionskoeffizient unabhängig von der Einfallsrichtung der Strahlung, so gilt bei lokalem thermischen Gleichgewicht bei der Temperatur T mit $B(T)$ =Schwarzkörperstrahlung nach Plank:

$$dN_{em\lambda} = \sigma_{e\lambda} \underbrace{\frac{\sigma_{a\lambda}}{\sigma_{e\lambda}} B(T)}_{Q_{em\lambda}} ds \quad (2.8)$$

Die hier beschriebene Strahlungsübertragungstheorie gilt nur unter folgenden Annahmen:

- Photonen sind punktförmig

- Photonen interagieren nicht miteinander (keine Interferenz)
- Alle Wechselwirkungen zwischen Photonen und Materie verlaufen spontan (keine induzierten Übergänge, keine Fluoreszenz, keine Phosphoreszenz)
- Die Strahlung ist unpolarisiert
- Die optischen Eigenschaften der Materie seien räumlich und zeitlich konstant (keine Refraktion im Medium)

Um die Wechselwirkungen der Partikel mit dem Strahlungsfeld beschreiben zu können, braucht man insgesamt drei voneinander unabhängige Parameter. Hierzu wird meist das Triplet aus Extinktionskoeffizient σ_e , Single Scattering Albedo (ω_λ) und der Phasenfunktion ϕ bzw. einem Parameter, der die Phasenfunktion der Volumenstreuung beschreibt (z.B. bei Verwendung einer Henyey-Greenstein-Phasenfunktion der Asymmetrieparameter g) verwendet.

Im Folgenden werden Messmethoden zur Bestimmung der optischen Parameter von Partikeln vorgestellt.

2.2 Messungen an Partikeln im trockenen Zustand

2.2.1 Aerosolphotometer

Ein vollständiger Satz der optischen Eigenschaften der Partikel im trockenen Zustand wird als Mittelwert für das Sonnenspektrum mit Hilfe des Aerosolphotometers (vgl. Abbildung 2.1) bestimmt [Hänel, 1994b]. Partikel werden hier-

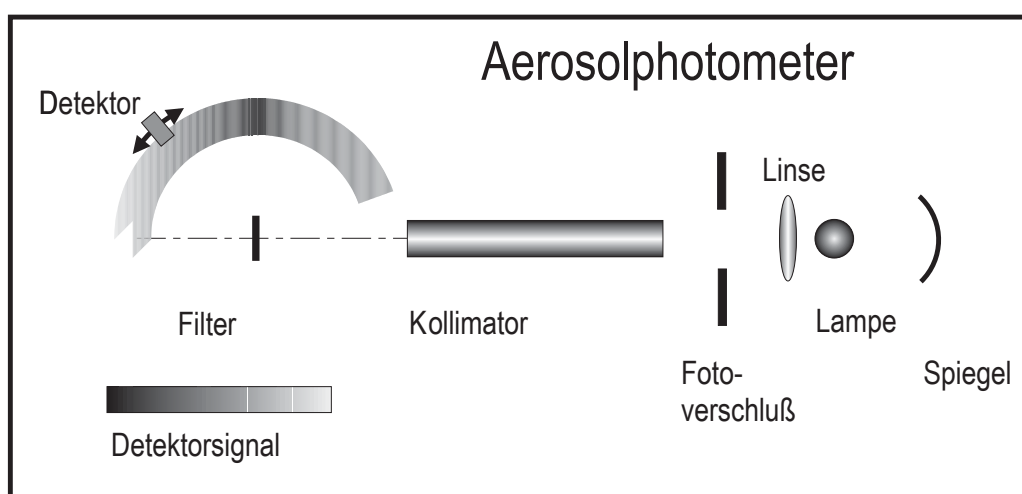


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau des Aerosolphotometers

zu auf einem NucleporeTM-Filter, einem Polycarbonat-Kernporenfilter mit Porendurchmessern von $0,2\mu\text{m}$ gesammelt. Diese Filter besitzen eine Abscheideeffizienz von über 95% für alle Partikelgrößen. Für Partikel mit Durchmessern $<20\text{nm}$ und $>100\text{nm}$ beträgt sie sogar nahezu 100%. Die photometrische Vermessung des belegten, sowie des unbelegten Filters erfolgt im Licht einer Halogen-Metaldampfampe (HMI-Metallogen[®]) der Firma Osram, mit einem sonnenähnlichen Spektrum. Mit Hilfe des Gauss-2 Verfahrens werden die halbräumlichen Integrale der Strahldichte für den vorderen- (Streuwinkel $\psi \leq 90^\circ$) und hinteren Halbraum ($\psi > 90^\circ$) numerisch bestimmt und anschließend noch auf die einfallende Strahlungsflussdichte normiert. Die normierten Integralwerte bezeichnet man auch als Durchlassvermögen \hat{p} und Rückstreuvermögen \hat{b} . Ist die Streustrahlung rotationssymmetrisch zur optischen Achse der einfallenden Strahlung, – wie dies hier in sehr guter Näherung gegeben ist– so benötigt man zur Bestimmung von Durchlassvermögen und Rückstreuvermögen nur Messungen der Strahldichten an festen, durch das numerische Integralverfahren vorgegebenen Stützstellen (Streuwinkeln) entlang eines halben Großkreises mit dem Filter im Zentrum (vgl. hierzu auch Abbildung 2.1 auf der vorherigen Seite). Konstruktionsbedingt kann nur der Streuwinkelbereich von $0-160^\circ$ messtechnisch erfasst werden. Da sich der Filter für rückwärts gestreute Strahlung wie ein Lambertscher Strahler verhält, können die fehlenden Messwerte für Streuwinkel größer 160° aus den gemessenen Werten der Strahldichten extrapoliert werden. Zusätzlich wird noch eine Abschätzung der oberen Schranke der Transmission \hat{t} aus den Messwerten der vorwärts gestreuten Strahlung bestimmt (näheres s. Hänel [1994b]).

Partikel und Filter bilden zusammen ein optisches Zweischichtensystem, das mit einem exakten Strahlungsübertragungsmodell, der Additionsmethode [van de Hulst, 1980]– abgeleitet aus den Invarianzprinzipien [Chandrasekhar, 1960]– beschrieben werden kann. Die Invarianzprinzipien bilden einen Satz von vier Integralgleichungen, die die von der Doppelschicht (1) durchgelassene (vorwärts gestreute plus transmittierte) und (2) rückwärts gestreute Strahlung, sowie die (3) vorwärts und (4) rückwärts gerichtete Strahlung an der Grenze zwischen den zwei Schichten beschreiben. Die vier Integralgleichungen enthalten als Parameter nur die Durchlass- und Rückwärtsstreuungseigenschaften der zwei Schichten für den Fall, dass sie jede für sich alleine mit dem Strahlungsfeld interagieren. Nach folgendem Schema werden zunächst die separaten Durchlass- und Rückwärtsstreuungseigenschaften bei bekannten optischen Eigenschaften τ, ω, ϕ der Filter und der Partikelschicht berechnet.

Die Filter- und Partikelschicht sind in der Modellvorstellung jeweils aus $n^* = 2^i$ $i \in \mathbb{N}$ Elementarschichten aufgebaut. Diese Elementarschichten besitzen sowohl die gleiche Phasenfunktion als auch Single Scattering Albedo der Filter- bzw. der Partikelschicht. Die optische Dicke einer solchen Elementarschicht sei so klein ($\tau \approx 1 \times 10^{-7}$), dass die Streustrahlung praktisch nur durch einen einzigen

Streuprozess entsteht. Für eine solche Elementarschicht kann die Strahlungsübertragungsgleichung 2.1 gelöst werden. Die Durchlass- und Rückstreueigenschaften der Elementarschicht sind somit bekannt. In einem zweiten Schritt werden nun mit Hilfe der Additionsmethode zwei identische Elementarschichten aneinandergeschaltet und die Durchlass- und Rückstreueigenschaften bestimmt. Diese Doppelschicht besitzt wiederum die gleiche Phasenfunktion und Single Scattering Albedo jedoch die doppelte optische Dicke (Verdopplungsmethode *van de Hulst* [1980]). Die in dieser Schicht entstehende Mehrfachstreuung wird ausschließlich durch Hin- und Herstreuen der Strahlung zwischen den zwei Elementarschichten erzeugt. Durch sukzessives „Verdoppeln“ der Schichten erhält man nach $i \simeq 25$ Verdopplungen [*Hänel*, 1994b] schließlich die Durchlass- und Rückstreueigenschaften der Filter- bzw. der Partikelschicht. Nachdem die Strahlungsübertragung nun für die Filterschicht und die Partikelschicht bekannt ist, können diese beiden Schichten mit Hilfe der Additionsmethode „addiert“ und die insgesamt durchgelassene und rückwärtsgestreute Strahlung berechnet werden.

Das Inversionsverfahren nach *Hänel* [1994b] berechnet nun durch eine Inversion mit dem oben beschriebenen Zweischichtenmodell aus den mit dem Photometer bestimmten Durchlass- und Rückstreuvermögen einen vollständigen Satz der optischen Eigenschaften der Partikelschicht (hier: optische Dicke τ , Single Scattering Albedo ω und Asymmetrieparameter der HG-Phasenfunktion g). Folgende drei implizite Gleichungen sind mit der Newton Iteration nach den optischen Eigenschaften der Partikelschicht zu lösen:

$$\hat{b}_{\text{gemessen}} - \hat{b}_{\text{Modell}} = 0 \quad (2.9)$$

$$\hat{p}_{\text{gemessen}} - \hat{p}_{\text{Modell}} = 0 \quad (2.10)$$

$$\frac{\hat{p}_{\text{gemessen}} - \hat{t}_{\text{Modell}}}{\hat{b}_{\text{gemessen}}} - r_{\text{Modell}}^* = 0 \quad (2.11)$$

\hat{b} = Rückstreuvermögen

$\hat{p} = \hat{t} + \hat{f}$ = Durchlassvermögen (Transmissionsvermögen \hat{t} ; Vorwärtsstreuanteil \hat{f})

$r^* = \frac{\hat{f}}{\hat{b}}$ = Verhältnis von Vorwärts- zu Rückstreuanteil

Die Inversion nach *Hänel* [1994b] wird in folgende drei Schritte untergliedert.

1. Berechnung der optischen Eigenschaften der Filterschicht aus den Messungen des Aerosolphotometers am unbelegten Filter. Hierzu wird das Gleichungssystem 2.9–2.11 durch Variation der optischen Eigenschaften des Filters gelöst
2. Berechnung von Startwerten für die Partikelschicht:

- (a) Iterative Berechnung der Startwerte der Optischen Dicke und der Single Scattering Albedo mit Hilfe eines Zweistrommodells (Asymmetrieparameter $g = \text{const.} = 0,65$) [Hänel, 1987a]
 - (b) Empirische Korrektur der Startwerte
 - (c) Iterative Berechnung des Asymmetrieparameters g mit Hilfe des exakten Strahlungsübertragungsmodells unter Verwendung der (konstant gehaltenen) Startwerte für τ und ω aus den Schritten (a) und (b)
3. Abschließende freie Iteration² der optischen Eigenschaften (τ, ω, g) der Partikel aus den Messdaten des belegten Filters mit Hilfe des exakten Strahlungsübertragungsmodells

Mit Hilfe des Inversionsverfahrens werden so die optische Dicke der Partikelschicht τ , die Single Scattering Albedo ω und der Asymmetrieparameter der Streuung g unter Annahme einer Henyey Greenstein Phasenfunktion (vgl. hierzu Tabelle 2.1 auf Seite 33) berechnet. Bei bekanntem Probevolumen \mathcal{V} und bekannter Abscheidefläche A der Partikel auf dem Filter, kann dann nach den Gleichungen 2.4 und 2.5 auf Seite 32 der Absorptions-, Streu- und Extinktionskoeffizient berechnet werden. Es gilt:

$$\begin{aligned}\sigma_e &= \frac{\tau \mathcal{V}}{A} \\ \sigma_s &= \omega \sigma_e \\ \sigma_a &= \sigma_e - \sigma_s\end{aligned}\tag{2.12}$$

Aus einer $\omega(k)$ Relation [Hänel, 1988] wird außerdem zunächst der Imaginärteil des komplexen Brechungsindex k bestimmt. Der Realteil n und der Volumenanteil des Rußes f_s wird anschließend mit Hilfe der Lorentz-Lorenz-Mischungsregel des Brechungsindex berechnet. Hierbei wird angenommen, dass es sich bei der untersuchten Partikelprobe um eine Mischung von Ruß ($n - ik = 1,76 - 0,45i$) und „nicht Ruß“ ($n - ik = 1,49 - 0,004i$) handelt. Näheres siehe Hänel [1988].

Da die Proben bei Laborfeuchtigkeit (<30% rel. Feuchte) vermessen wurden, werden mit sehr guter Näherung bei diesem Verfahren die optischen Eigenschaften trockener Partikel bestimmt. Sämtliche Ergebnisse sind spektrale Mittelwerte für den solaren Spektralbereich. Nach Blanchet [1982] entsprechen diese breitbandigen Werte spektralen Werten bei der Wellenlänge $0,7 \mu\text{m}$.

²Unter dem Begriff der „freien Iteration“ versteht man hier die gleichzeitige Iteration nach allen gesuchten optischen Eigenschaften.

2.2.2 Integrierendes Nephelometer

Mit Hilfe eines integrierenden Nephelometers wurden während LACE 98 von einer Arbeitsgruppe³ des Instituts für Troposphärenforschung (IfT), Leipzig, hochaufgelöste Zeitreihen des Streu- und des Rückstreuoeffizienten⁴ atmosphärischer Partikel im trockenen Zustand bestimmt. Das hier verwendete Nephelometer 3563 der Firma TSI⁵ bestimmt den Streukoeffizienten gleichzeitig bei den Wellenlängen 450, 550 und 700nm. Abbildung 2.2 zeigt den schematischen Aufbau dieses Nephelometers.

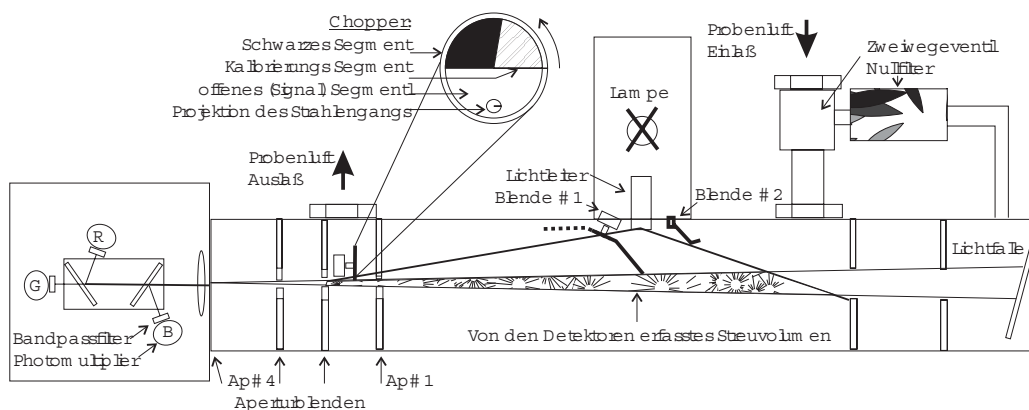


Abbildung 2.2: Schematischer Aufbau des integrierenden Nephelometers TSI 3563 der Firma TSI. Abbildung modifiziert nach Anderson *et al.* [1996]

Licht einer 75W Quarz Halogenlampe wird über einen Lichtleiter in das mit Probenluft ständig durchspülte Innere des Nephelometers geleitet. Am Ende des Lichtleiters fungiert eine Opalglasscheibe als sekundäre Lichtquelle mit nahezu idealer Lambertscher Abstrahlungscharakteristik. Die Strahlung wird nun an Partikeln, Luftmolekülen und zum Teil auch an den geschwärzten Oberflächen des Nephelometers gestreut. Aperturblende (AP#1) und Blende (AP#2) gewährleisten, dass nur Streustrahlung mit Streuwinkeln von 7-170° die Detektoren (3 Photomultiplier mit vorgeschalteten Schmalbandfiltern für 450 (B), 550 (G) und 700nm (R) Wellenlänge) aus dem in der Abbildung mit einer Schraffur gekennzeichneten Streuvolumen erreicht. Das Signal der Photomultiplier (Anzahl der Photonen $C = \text{Counts}$) wird zur weiteren Auswertung mit einem Computer erfasst. Zur Bestimmung des Rückstreuoeffizienten kann mit Hilfe der schwenkbaren

³Arbeitsgruppe: PD. Dr. Alfred Wiedensohler, Institut für Troposphärenforschung (IfT), Leipzig

⁴**Rückstreuoeffizient:** Streukoeffizient der Partikel bzgl. Streuung in den rückwärtigen Halbraum (Streuwinkel größer 90°)

⁵TSI Incorporated Particle Instruments, St. Pauls, USA (MN); TSI GmbH, Aachen, Deutschland

Blende #1 zudem Streustrahlung mit Streuwinkeln kleiner 90° abgeschattet werden. Ein mit 23Hz rotierender 3-Sektoren-Unterbrecher(Chopper) erlaubt zudem eine kontinuierliche Bestimmung des Hintergrundrauschens der Photomultiplier. Der Sektor „schwarz“ blendet hierfür alle Streustrahlung aus. Eine Überwachung der Lampenausgangsleistung erfolgt, indem Opalglas im Sektor „Kalibrierung“ direkte Strahlung der Lampe in Richtung der Detektoren streut. Die eigentliche Messung erfolgt, wenn im Sektor „Signal“ das Licht ungehindert zu den Detektoren gelangt. Mit Hilfe dieser drei Messungen wird das Detektorsignal normiert, d.h. es werden Lampenintensitätsschwankungen und das Dunkelrauschen der Photomultiplier aus dem Roh-Signal entfernt. Zur Bestimmung der Streustrahlung, die nicht durch Partikel erzeugt wurde (normiertes Detektorsignal C_z), sondern durch Streuung an Wänden und an Luftmolekülen, wird in regelmäßigen Abständen über ein Zweiwegeventil die Probenluft über einen Filter geleitet, so dass für diese Messungen keine Partikel in das Nephelometer gelangen.

Der Streukoeffizient σ_s bzw. der Rückstreukoeffizient σ_{bs} wird nun aus den gemessenen und normierten Photonenzahlen C_m bzw. C_{mb} pro Zeitintervall wie folgt berechnet:

$$\sigma_s = K_2 C_m - W - \sigma_{k_{\text{luft}}}(T, P) \quad (2.13)$$

$$\sigma_{bs} = K_2 C_{mb} - W_b - K_4 \sigma_{k_{\text{luft}}}(T, P) \quad (2.14)$$

Der von der Temperatur und dem Luftdruck abhängige Streukoeffizient der trockenen Standard-Luft⁶ $\sigma_{k_{\text{luft}}}(T, P)$, wird mit Hilfe der Theorie der Rayleighstreuung berechnet (vgl. z.B. *Seinfeld & Pandis* [1998]).

Die notwendigen Kalibrierungskonstanten werden aus Messungen der normierten Detektorsignale mit Hilfe eines stark (Index: „hi“) und eines weniger stark (Index: „low“) streuenden partikelfreien Kalibrierungsgases mit den ebenfalls mit Hilfe der Theorie der Rayleighstreuung berechneten Streukoeffizienten $\sigma_{k_{\text{hi}}}$ und $\sigma_{k_{\text{low}}}$ nach folgenden Gleichungen bestimmt:

$$K_2 = \frac{\sigma_{k_{\text{hi}}} - \sigma_{k_{\text{low}}}}{C_{\text{hi}} - C_{\text{low}}}$$

$$K_4 = \frac{C_{\text{hib}} - C_{\text{lowb}}}{C_{\text{hi}} - C_{\text{low}}}$$

$$W = K_2 C_z \sigma_{k_z}$$

$$W_b = K_2 C_{zb} - K_4 \sigma_{k_z}$$

Hierbei bezeichnen C_X und C_{X_b} wiederum die normalisierten Detektorsignale bezüglich des Kalibrierungsgases $X=\{\text{hi,low,z}\}$. Der Index „z“ bezeichnet Mess-

⁶trockene Standardluft besteht nach Definition aus 78,09% N_2 , 20,95% O_2 , 0,93% Ar und 0,03% CO_2

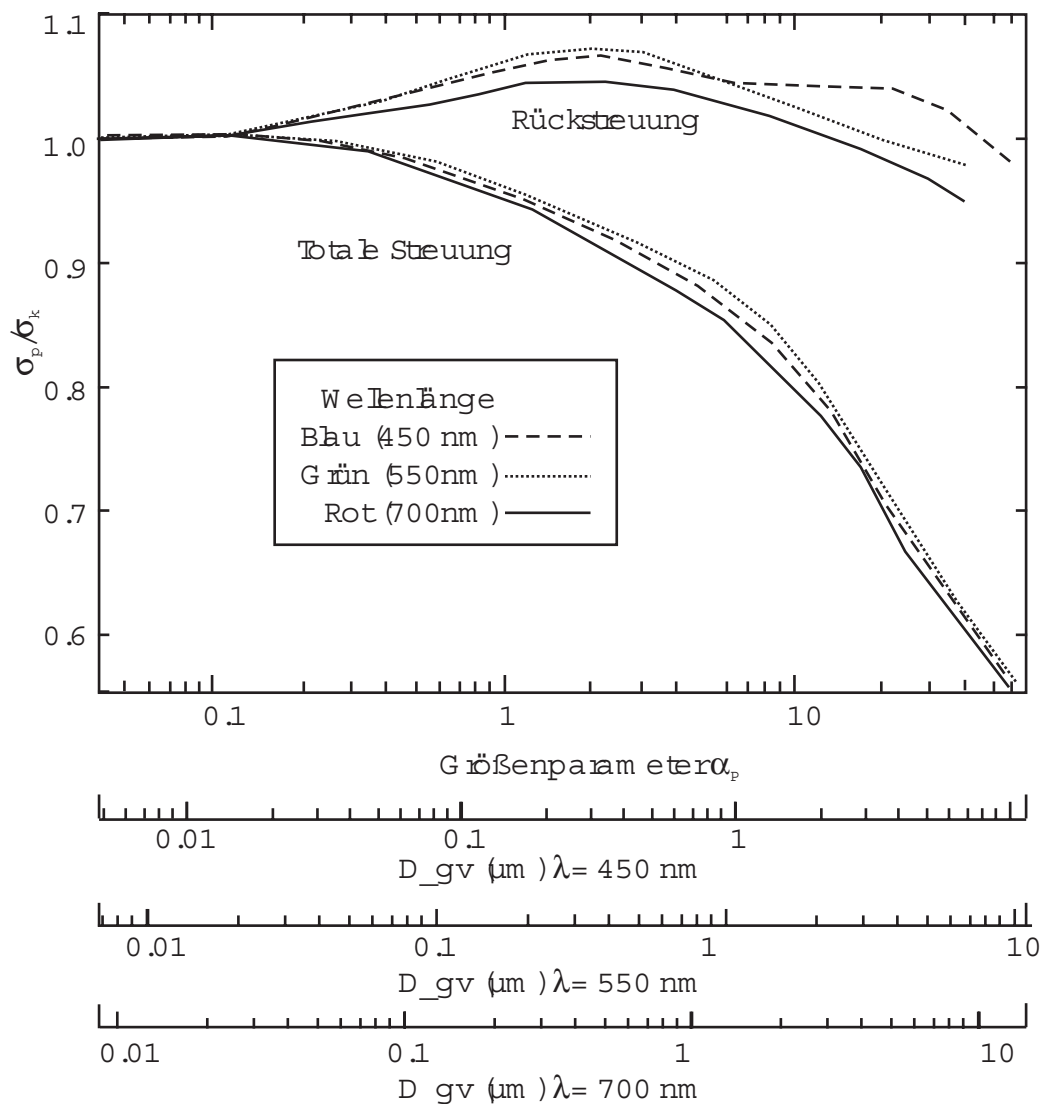


Abbildung 2.3: Systematischer Fehler des Nephelometers als Funktion des Größenparameters des volumengewichteten mittleren Radius der Größenverteilung: Aufgetragen ist das Verhältnis (σ_p/σ_k) von gemessenem Streukoeffizient zu einem mit Hilfe der Mie-Theorie berechneten Streukoeffizienten bei den Wellenlängen 450, 550 und 700nm über dem Größenparameter $\alpha_P = \pi D_{gv} \lambda^{-1}$. Bei den Rechnungen wurde eine Lognormalverteilung der Größenverteilung der Partikel angenommen mit dem volumengewichteten Mittelwert des Radius D_{gv} der Größenverteilung. Die zusätzlichen Skalen der Abszisse zeigen die zugehörigen volumengewichteten mittleren Durchmesser der vorausgesetzten Größenverteilungen für die Wellenlängen ($\lambda = \{400, 550, 700\text{nm}\}$) [Anderson et al., 1996]

werte bei eingeschaltetem Nullfilter („zero-air“), die, wie oben beschrieben, in regelmäßigen Abständen während einer Feldmessung gewonnen werden.

Die Kalibrierung mit Hilfe von Gasen hat den Nachteil, dass systematische Fehler größer als 20% auftreten, sobald die Phasenfunktion der Streuung der betrachteten Partikel sich signifikant von der Phasenfunktion der Rayleighstreuung unterscheidet (vgl. Tabelle 2.1 auf Seite 33). Dies ist schon bei einem mittleren Größenparameter⁷ α_P der Partikel größer als 10 der Fall. Bei einer Wellenlänge von 700nm betrifft dies schon Partikelkollektive mit einem mittleren Volumenäquivalentradius von $1\mu\text{m}$ (vgl. hierzu Abbildung 2.3 auf der vorherigen Seite). Der Fehler des Rückstreuungskoeffizienten ist hingegen auch für sehr große Größenparameter $\alpha_P \sim 40 - 50$ stets kleiner als 10% [Anderson et al., 1996].

2.2.3 Integrating Plate Photometer (IP)

Das Verfahren der integrierenden Platte (IP= engl. integrating plate) ist ein einfaches Verfahren, den Absorptionskoeffizienten σ_a der atmosphärischen Partikel zu bestimmen. Partikel werden hierbei auf einem Filtersubstrat gesammelt und photometrisch vermessen. Während LACE 98 wurden Messungen mit diesem Verfahren von einer Gruppe der Universität Wien⁸ durchgeführt.

Abbildung 2.4 auf der nächsten Seite zeigt den schematischen Aufbau des verwendeten Photometers. Namensgebend für das Verfahren ist eine Opalglasplatte, die die von dem Filtermaterial und von den Partikeln vorwärts gestreute und transmittierte Strahlung diffus streut. Der nachgeschaltete Photomultiplier liefert somit ein Messsignal, von dem angenommen wird, dass es proportional zum Integralwert der in den vorderen Halbraum gestreuten Strahlungsenergie ist. Die IP-Methode wurde von Lin et al. [1973] entwickelt. Wie beim Aerosolphotometer werden auch bei der IP-Methode Partikel auf einem NucleporeTM-Filter mit einem Porendurchmesser von $0,2\mu\text{m}$ gesammelt, dessen Transmissionsgrad⁹(T_0) vor und nach der Belegung mit Partikeln (T_R) photometrisch bestimmt wird. Bei dem verwendeten Instrument der Universität Wien wird ein Teil des Filtermaterials durch Auflegen einer Plastikabdeckung von 1cm Durchmesser nicht mit Partikeln belegt. Auf diese Weise kann man die Messung am belegten und unbelegten Teil des Filters zeitnah auch nach der Belegung während des eigentlichen Feldexperimentes vornehmen. Eine erste Näherung des Absorptionskoeffizienten wird nun mit

⁷Größenparameter $\alpha_P = 2\pi r/\lambda$ (Partikelradius r , Wellenlänge λ)

⁸Arbeitsgruppe Prof. Dr. Horvath, Institut für Experimentalphysik, Universität Wien

⁹Der **Transmissionsgrad** T_{Filter} eines Filters oder allgemeiner einer beliebigen Schicht, ist das Verhältnis des durch die Schicht durchgelassenen Strahlungsflusses zum einfallenden Strahlungsfluss.

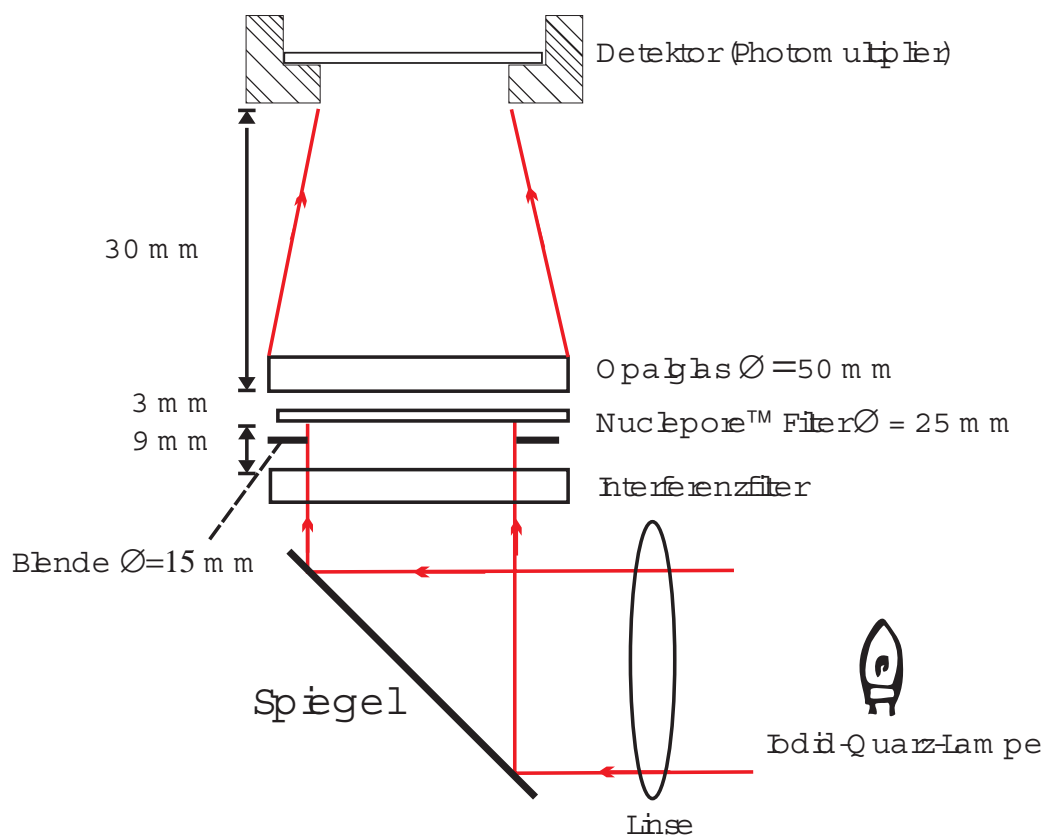


Abbildung 2.4: Schematischer Aufbau des IP-Photometers

Hilfe von Gleichung 2.15 *Lin et al.* [1973] bestimmt.

$$\sigma_a = -\frac{A}{V} \ln \left(\frac{T_0}{T_R} \right) \quad (2.15)$$

Wobei A die Filterfläche und V das Probenvolumen bezeichnen. Strahlung, die in den hinteren Halbraum (Streuwinkel $\psi > 90^\circ$) gestreut wird, bleibt bei der IP-Methode unberücksichtigt. Bei der Auswertung der Messung mit Gleichung 2.15 führt dies zu einem erhöhten Wert des Absorptionskoeffizienten der Partikelschicht. Aus diesem Grund muss der mit Gleichung 2.15 bestimmte (Pseudo-) Absorptionskoeffizient empirisch korrigiert werden [*Horvath, 1997*].

Durch Einsetzen verschiedener Interferenzfilter (wie in Abbildung 2.4 auf der vorherigen Seite gezeigt) kann man den Absorptionskoeffizienten auch für schmalbandige Wellenlängenbereiche bestimmen.

Analog zum Aerosolphotometer, werden die photometrischen Messungen der IP-Methode im Labor bei rel. Feuchten kleiner als 30% vorgenommen, so dass auch hier der berechnete Wert des Absorptionskoeffizienten für Partikel im trockenen Zustand gilt.

2.2.4 PSAP: Ruß (Particle Soot)-Absorptions Photometer

Mit Hilfe des Ruß (Particle Soot)-Absorptions Photometers (PSAP) der Firma Radiance Research, Seattle (WA) wurde während LACE 98 der Absorptionskoeffizient der Partikel von der Arbeitsgruppe Wiedensohler des IfT, Leipzig, bestimmt. Analog zum Verfahren der integrierenden Platte (IP) wird der Absorptionskoeffizient mit Hilfe der Gleichung 2.15 [*Lin et al., 1973*] bestimmt. Der schematische Aufbau des Geräts ist in Abbildung 2.5 auf der nächsten Seite abgebildet. Im Gegensatz zur IP-Methode wird der Transmissionsgrad des Filters während seiner Belegung mit Partikeln im Minutentakt bestimmt. Formal wird jeder dieser Zeitabschnitte j als eigenständige Messung mit einem Filter behandelt, der einen Transmissionsgrad $T_0 = T_{j-1}$ vor der Belegung und einen Transmissionsgrad $T_R = T_j$ nach der Belegung mit Partikeln besitzt. Bei bekannter Abscheidfläche A der Partikel auf dem Filter und bei bekanntem Probevolumen \mathcal{V} , wird der Absorptionskoeffizient des PSAP $\sigma_{a\text{PSAP}}$ im Zeitintervall j durch folgende Gleichung berechnet.

$$\sigma_{a\text{PSAP}}(j) = -\frac{A}{V} \ln \left(\frac{T_{j-1}}{T_j} \right) \quad (2.16)$$

PSAP-Absorptionskoeffizienten bedürfen analog zu den IP-Absorptionskoeffizienten einer Korrektur. Als ein Teil der Schließung wird eine Kalibrierung der PSAP-Absorptionskoeffizienten in Teil III vorgestellt.

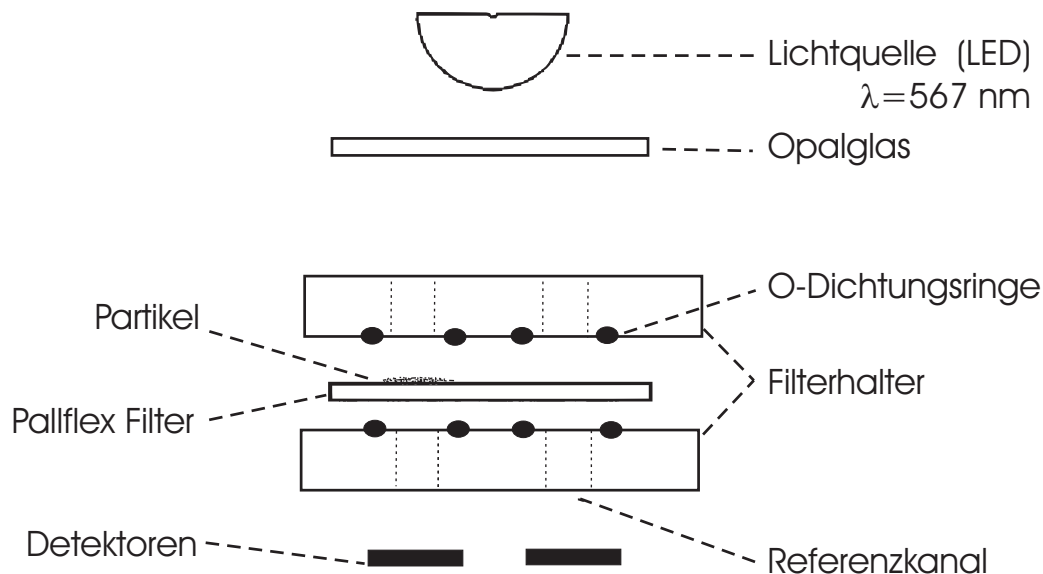


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau des Particle Soot Absorption Photometers (PSAP)
Abbildung nach Bond *et al.* [1999]

2.3 Messungen an Partikeln bei Umgebungsfeuchte

Anders als bei den bisher vorgestellten Verfahren handelt es sich bei den zwei im Folgenden vorgestellten Verfahren zur Bestimmung des Extinktionskoeffizienten der Partikel um Fernerkundungsverfahren, die die optischen Eigenschaften der Partikel in situ bestimmen. Jede Messung dieser Instrumente betrachtet ein horizontal ausgedehntes Probevolumen zu einem bestimmten Zeitpunkt. Filterbasierte Messungen bestimmen hingegen immer einen zeitlichen Mittelwert an einem festen Ort.

2.3.1 Telephotometer

Das Telephotometer der Universität Wien besteht aus einem astronomischen Fernrohr (Schmidt Cassegrain), das mit entsprechenden Filtern und einem Detektor (Photodiode) modifiziert wurde. Mit Hilfe dieses Instruments kann man den Extinktionskoeffizienten der Atmosphäre bei den Wellenlängen $\lambda = \{400, 450, 500, 440, 575, 600, 625, 650, 700\text{nm}\}$ bestimmen. Strahlung aus einem Raumwinkelelement¹⁰ aus Richtung des Zielobjektes, die das Telephotometer erreicht, setzt sich nach Maßgabe der Strahlungsübertragungsgleichung (vgl. Gleichung

¹⁰Das Raumwinkelelement wird durch den Vergrößerungsfaktor des verwendeten Teleskops und einer in der Bildebene eingesetzten Blende bestimmt (vgl. Abbildung 2.6)

chung 2.1 auf Seite 31) hauptsächlich aus zwei Anteilen zusammen. Zum einen erreicht das Telephotometer Strahlung, die vom Objekt ausgeht und in der zwischen Objekt und dem Telephotometer liegenden Atmosphäre durch Streuung aus dem Strahl und Absorption geschwächt wird. Zum anderen erreicht auch Strahlung durch Streuung in den Strahl das Telephotometer. Emission kann bei den betrachteten Wellenlängen vernachlässigt werden. Das Streckenintegral der Strahlungsübertragungsgleichung (SÜG) entlang des Sehstrahls vom Telephotometer zum Zielobjekt, ergibt für die mit dem Telephotometer gemessene Strahldichte N_λ :

$$N_\lambda(s) = N_{0\lambda} \exp(-\overline{\sigma_{e_\lambda}} s) + \overline{Q_\lambda} (1 - \exp(-\overline{\sigma_{e_\lambda}} s)) \quad (2.17)$$

s = Länge des Sehstrahls (Entfernung Zielobjekt — Telephotometer)

$\overline{Q_\lambda}$ = Mittel der Quellenstrahldichte entlang des Sehstrahls

$\overline{\sigma_{e_\lambda}}$ = integraler Mittelwert des Extinktionskoeffizienten entlang des Sehstrahls

Für ein Objekt, das sich theoretisch unendlich weit entfernt vom Telephotometer befindet, ist die Strahldichte, die das Telephotometer aus seiner Richtung empfängt, nur noch von der Quellenstrahldichte durch Streuung in den Strahl abhängig ($N_\lambda(\infty) = Q_\lambda$). Auf diese Weise kann in sehr guter Näherung durch eine Messung der Strahldichte in Richtung des freien Horizonts die Quellenstrahldichte durch Streuung in den Strahl mit dem Telephotometer bestimmt werden. Die Strahldichte, die vom Objekt ausgeht ($N_{0\lambda}$), kann näherungsweise mit dem Telephotometer bestimmt werden, indem man ein Vergleichsobjekt in unmittelbarer Nähe des Telephotometers anvisiert und die vom Objekt ausgehende Strahldichte bestimmt. Das Vergleichsobjekt sei so nahe, dass Strahlungsprozesse in der Atmosphäre zwischen Objekt und Telephotometer vernachlässigt werden können. Jetzt kann man Gleichung 2.17 nach dem Extinktionskoeffizienten σ_{e_λ} auflösen.

$$\sigma_{e_\lambda} = -\ln \left[\frac{N_\lambda(\infty) - N_\lambda(s)}{N_\lambda(\infty) - N_{0\lambda}} \right] = -\ln \left[\frac{i_{\lambda\infty} - i_{\lambda s}}{i_{\lambda\infty} - i_{\lambda 0}} \right] \quad (2.18)$$

Es zeigt sich, dass eine Kalibrierung des gemessenen lichtelektrischen Stroms der Photodiode i zu Strahldichten unnötig ist, solange die Photodiode und der nachgeschaltete Operationsverstärker im linearen Bereich arbeiten, in dem der Strom proportional zur auftreffenden Strahlungsenergie ist.

Abbildung 2.6 auf der nächsten Seite zeigt den schematischen Aufbau und die Messanordnung des Telephotometers im Feldeinsatz. Eine drehbare planparallele Platte erlaubt den schnellen Wechsel der Justierung zwischen einem Zielobjekt und dem entfernten Horizont (∞).

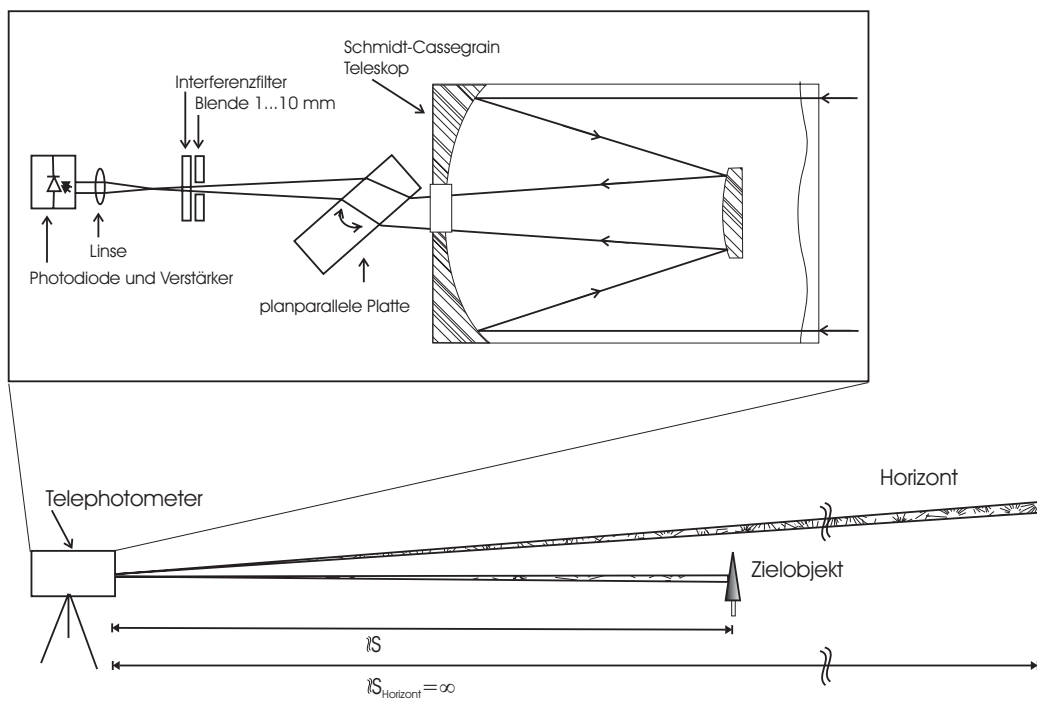


Abbildung 2.6: Schematischer Aufbau und Messanordnung des Telephotometers im Feldeinsatz.

Der Extinktionskoeffizient der Atmosphäre setzt sich additiv aus den Extinktionskoeffizienten der Luft und dem Extinktionskoeffizienten von Partikeln zusammen. Man erhält den Extinktionskoeffizienten der Partikel als Differenz von dem atmosphärischen Extinktionskoeffizienten und dem Extinktionskoeffizienten der Luft, der bei bekannter Temperatur, Feuchte und Luftdruck mit Hilfe der Theorie der Rayleighstreuung berechnet wird.

2.3.2 Horizontales Lidar

Das hier verwendete horizontale Lidar (Light detection and ranging) sondiert die Atmosphäre aktiv mittels eines gepulsten Laserstrahls. Das Laserlicht wird z.B. an Gasmolekülen und Aerosolpartikeln in der Atmosphäre gestreut und absorbiert. Streustrahlung, die rückwärts in Richtung des Laserstrahls gestreut wird, wird mit einem astronomischen Teleskop (Schmidt Cassegrain mit einem Spiegeldurchmesser von 30cm und 4mrad Gesichtsfeld)¹¹ aufgefangen und mittels verschiedener Detektoren registriert. Aus der zeitlichen Differenz zwischen Strahlemission und Detektion der Streustrahlung kann so, bei bekannter Lichtgeschwindigkeit in der Atmosphäre, aus dem zeitlich aufgelösten Detektorsignal ein räumlich aufgelöstes Signal entlang des Laserstrahls berechnet werden. Bei dem hier verwendeten Lidar wird ein Nd-YAG Laser mit 220, 100 und 155mJ Puls Energie bei den Wellenlängen 1064, 532 und 355nm bei einer Strahldivergenz von 0,6mrad verwendet. Ein Puls des Laserstrahls dauert weniger als $\hat{\tau} = 10\text{ns}$ bei einer Pulsfrequenz von 10Hz. Verwendet werden folgende Detektoren: Für die Wellenlänge $\lambda = 1064\text{nm}$ eine PIN-Diode und zwei Photomultiplier für die Wellenlängen $\lambda = 532$ und 355nm . Dieses Gerät kann die Atmosphäre mit Höhenwinkeln des Laserstrahls von -2° bis 95° untersuchen. Die horizontale Reichweite beträgt 5km und die räumliche Auflösung 3m[Wiegner *et al.*, 1995].

Aus den horizontalen Messungen wurden mit Hilfe der Slope Methode [Collis & Russell, 1976; Klett, 1981] der mittlere Extinktionskoeffizient der Partikel berechnet. Die Single Scattering Lidar-Gleichung 2.19 für ein monochrom gepulstes Lidar, muss hierfür gelöst werden.

$$P(s) = P_0 \frac{\hat{c}\hat{\tau}}{2} A_{\text{Lidar}} \frac{\beta_l(s)}{s^2} \exp \left[-2 \int_0^s \sigma(s') ds' \right] \quad (2.19)$$

Hierbei bezeichnen P_0 die Ausgangsleistung des Lasers, A_{Lidar} die effektive Empfängerfläche des Lidars, $\beta_l(s)$ den Lidar-Volumenrückstreukoeffizienten¹²

¹¹Vergleiche hierzu den schematischen Aufbau eines Schmidt Cassegrain Teleskops in Abbildung 2.6 auf der vorherigen Seite

¹²Der Lidar-Volumenrückstreukoeffizient β_l bezeichnet anders als der Rückstreukoeffizient σ_{bs} den Streukoeffizienten bzgl. des Streuwinkels $\psi = 180^\circ$. Es gilt: $\beta_l = \sigma_s \phi(\psi = 180^\circ)$

und $\sigma_{e\lambda}$ den Extinktionskoeffizienten der Atmosphäre als Funktion der Entfernung s , die der Lichtstrahl in der Atmosphäre zurückgelegt hat. Diese Entfernung berechnet sich zu $s = \hat{c}(t - t_0)$ mit der Lichtgeschwindigkeit \hat{c} und der Zeitdifferenz $t - t_0$ die zwischen dem Aussenden und dem Empfang des Laserstrahls im Detektor vergangen ist. Die Lösung für das entfernungskorrigierte, normierte Detektorsignal ($Sl \equiv \ln(s^2 P(s))$) mit dem gemessenen Detektorsignal $P(s)$ lautet:

$$\frac{dSl}{ds} = \frac{1}{\beta_l} \frac{d\beta_l}{ds} - 2\sigma_{e\lambda} \quad (2.20)$$

Unter der Annahme, dass die Atmosphäre homogen bzgl. β_l ist, also insbesondere $\frac{d\beta_l}{ds} = 0$ gilt, folgt aus Gleichung 2.20 für den Extinktionskoeffizienten:

$$\sigma_{e_{\text{hom}}} = -\frac{1}{2} \frac{dSl}{ds} \quad (2.21)$$

Diese Lösung der Lidar-Gleichung ist unter dem Namen „Slope Methode“ bekannt. Analog zum Telephotometer wird nun aus dem atmosphärischen Extinktionskoeffizienten durch Abzug des Extinktionskoeffizienten der Luft, der Extinktionskoeffizient der Partikel berechnet. Die Annahme $\frac{d\beta_l}{ds} = 0$ ist für die Verhältnisse in der Atmosphäre nicht sehr realistisch. Treten z.B. „Aerosolwolken“ im Gesichtsfeld des Lidars auf, so kann aufgrund der Inhomogenität in der Atmosphäre der Extinktionskoeffizient mit Hilfe der Slope Methode nicht berechnet werden. Die Slope Methode ist aus diesem Grund auch nur als grobe Näherung zur Bestimmung des Extinktionskoeffizienten einzustufen.

2.4 Strahlungsmessungen im solaren Spektralbereich

Neben den mikrophysikalischen und optischen Eigenschaften der Partikel wurden im Rahmen dieser Arbeit auch Messungen des solaren Strahlungsfeldes am Erdboden durchgeführt. Mit Hilfe des Sieben-Sensor-Bilanzphotometers wurden das solare Strahlungsangebot und der Vektor der Nettostrahlungsflussdichte¹³ bestimmt. Im Folgenden werden das Sieben-Sensor-Bilanzphotometer und die notwendigen Auswertgleichungen vorgestellt.

Das Sieben-Sensor-Bilanzphotometer [Hänel & Kastner, 2000; Hannessen, 1995; Warbinek, 1993] besteht aus drei Albedometern der Firma Thies mit jeweils zwei sternförmigen Thermosäulen und einem Pyranometer CM11 der Firma Kipp und Zonen mit Schattenring. Die Detektorebenen der drei Albedometer

¹³Zur Bestimmung des Vektors der Nettostrahlungsflussdichte sind nur die 6 Sensoren der Albedometer des Bilanzphotometers notwendig.

stehen jeweils orthogonal zueinander. Mit den drei Albedometern werden die insgesamt sechs Bestrahlungsstärken ¹⁴(H_x $x = 1 \dots 6$) aus dem oberen und unteren Halbraum (H_6, H_5), in West/Ost Richtung (H_2, H_1) bzw. in Nord/Süd Richtung (H_3, H_4) im Wellenlängenbereich $\lambda = \{0, 3 \dots 3, 5\} \mu\text{m}$ gemessen. Die Differenzen der Bestrahlungsstärken in den sechs Richtungen (Ost/West, Nord/Süd, oben/unten) bilden die Komponenten des Vektors der Nettostrahlungsflussdichte \vec{F}_n .

$$\vec{F}_n = \begin{pmatrix} F_{nx} \\ F_{ny} \\ F_{nz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} H_1 - H_2 \\ H_3 - H_4 \\ H_5 - H_6 \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

Mit Hilfe des Pyranometers mit Schattenring wird die Bestrahlungsstärke der diffusen Himmelsstrahlung¹⁵ bestimmt. Der Schattenring des Pyranometers blendet neben der direkten Sonnenstrahlung aber auch einen Teil der diffusen Himmelsstrahlung aus. Der Messwert der diffusen Himmelsstrahlung (H_d) muss also um diesen nicht erfassten diffusen Anteil korrigiert werden. Eine verbesserte Schattenringkorrektur wird im Anhang A.2 vorgestellt.

Das Strahlungsangebot S beschreibt den Strahlungsfluss aus allen Richtungen durch ein infinitesimales Volumenelement. Als Richtungsintegral über die Strahlendichte N über alle Richtungen $\vec{\omega}_i$ besitzt es die Einheit einer Strahlungsflussdichte.

$$S = \int_{4\pi \text{ [sr]}} N(\vec{\omega}_i) d\omega_i = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} N(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi \quad (2.23)$$

$$N = \int_{\lambda=0,3 \mu\text{m}}^{3,5 \mu\text{m}} N_\lambda d\lambda$$

Das Strahlungsangebot S setzt sich aus der Strahlungsflussdichte der direkten Strahlung F_S und dem Strahlungsangebot der diffusen Strahlung S_d zusammen:

$$S = F_S + \underbrace{\int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} N_d(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi}_{S_d} \quad (2.24)$$

In guter Näherung lässt sich nun das Strahlungsangebot aus den Messwerten bei bekanntem Azimutwinkel ϕ_s und Zenitparameter $\mu_s = \cos \theta_{\text{Sonne}}$ der Sonne

¹⁴Strahlungsfluss durch die Detektorebene aus dem über dem Detektor liegenden Halbraum

¹⁵Strahlungsflussdichte der diffusen Himmelsstrahlung durch die Horizontalebene im Wellenlängenbereich $\lambda = \{0, 3 \dots 3, 5\} \mu\text{m}$

mit folgender Formel berechnen:

$$S = \frac{2}{3} \sum_{i=1}^6 H_i + \left(1 - \frac{2}{3} \left(|\mu_s| + \sqrt{1 - \mu_s^2} (|\sin \phi_s| + |\cos \phi_s|) \right) \right) F_s \quad (2.25)$$

Die Strahlungsflussdichte der direkten Sonnenstrahlung F_s berechnet sich aus der Differenz der Globalstrahlung H_6 und der gemessenen diffusen Himmelsstrahlung H_d zu: $F_s = \frac{1}{\mu_s}(H_6 - H_d)$.

Gleichung 2.25 ist eine Näherungsfunktion, der ein Modell zugrunde liegt, in dem der Richtungsraum in 48 gleichgroße Raumwinkelbereiche (Segmente) unterteilt wird. Innerhalb von jedem dieser Segmente wird Isotropie der Strahlung angenommen. Die Strahldichte darf sich von Segment zu Segment beliebig ändern (Näheres zu diesem Modell s. [Hänel & Kastner, 2000; Hannessen, 1995; Warbinek, 1993]).

Kapitel 3

Mikrophysikalische und chemische Eigenschaften der Partikel

Im letzten Kapitel wurden die Messmethoden und deren theoretische Grundlagen für die optischen Partikeleigenschaften vorgestellt. Für die Messungen der optischen Eigenschaften der Partikel im trockenen Zustand wird später im Rahmen der direkten Schließung in Kapitel 4 ein direkter Messwertevergleich vorgenommen. In diesem Kapitel werden die für die indirekte Schließung (Kapitel 5) benötigten mikrophysikalischen Messungen der Partikeleigenschaften im Detail vorgestellt. Diese Messungen bilden u.a. die Basis für die in Teil IV vorgestellten Modellrechnungen.

Atmosphärische Partikel treten in sehr unterschiedlichen Größen¹ auf, die sich von wenigen Moleküldurchmessern bis hin zu einigen hundert Mikrometern erstreckt (z.B. Pollen). Meteorologisch interessant ist der Radiusbereich von wenigen Nanometern bis hin zu $10\text{-}30\mu\text{m}$. Größere Partikel werden sehr schnell durch Sedimentation aus der Atmosphäre entfernt. Kleine Partikel ($< 100\text{nm}$) entstehen zum Großteil bei Gasphasenreaktionen aus Vorläufergasen wie zum Beispiel Schwefeldioxid oder schwer flüchtiger Kohlenwasserstoffe. Diese wenige Nanometer großen Partikel koagulieren mit anderen Partikeln bei Zusammenstößen aufgrund ihrer Brownschen Bewegung (Brownsche Koagulation). Dieser Prozess ist die Hauptquelle der Partikel des so genannten „Akkumulationsbereichs“ zwischen 100nm und $1\mu\text{m}$ der Größenverteilung. Partikel größer $1\mu\text{m}$ sind zum Teil biologischen Ursprungs (z.B. Bakterien, Algen und Pollen). Zum anderen entstehen sie aber auch bei der Winderosion (Mineralstäube) oder gelangen beim Zerplatzen von Luftbläschen an der Meeresoberfläche in die Atmosphäre (Meeressalzpartikel). Die größte Verweildauer in der Atmosphäre besitzen die Partikel des

¹In dieser Arbeit wird der Begriff „Größe“ eines Partikels synonym zu seinem Volumenäquivalentradius (s. Gleichung 5.2 auf Seite 80) verwendet.

Akkumulationsbereiches. Größere Partikel werden schnell infolge Sedimentation aus der Atmosphäre entfernt, kleinere Partikel koagulieren schnell untereinander und bilden schließlich den Akkumulationsbereich der Größenverteilung.

3.1 Größenverteilungsmessungen

Eine der wichtigsten Eingangsgrößen für Modellrechnungen, die sich mit den Eigenschaften und Auswirkungen der atmosphärischen Aerosolpartikel beschäftigen, ist die Größenverteilung². Prozesse, wie beispielsweise die Sedimentation, das Wachstum der Partikel mit der rel. Feuchte, die Aktivierung von Wolkenkondensationskernen sowie die Streuung an und Absorption von Strahlung in Aerosolpartikeln, sind stark abhängig von der Größe der Partikel. Im Rahmen eines Schließungsexperimentes ermöglicht die Kenntnis der Größenverteilung der Partikel zahlreiche Schließungen, wie sie später im Teil III („Schließung“) dieser Arbeit noch vorgestellt werden.

Die Partikelgrößenverteilung im Bereich von 3-800nm Durchmesser wurden während LACE 98 mit Hilfe eines TDMPS (Twin Differential Mobility Particle Sizer) bestimmt. Das ebenfalls zum Einsatz kommende APS³ bestimmt die Größenverteilung der Partikel mit einem Durchmesser von größer 800nm. Beide Messinstrumente wurden während LACE 98 von einer Arbeitsgruppe des IFT betreut.

Im Einlass des TDMPS (vgl. Abbildung 3.1 auf der nächsten Seite) werden Partikel im Probeluftstrom einer Krypton 85 (⁸⁵Kr) Quelle, einer bipolaren Ladungsquelle, ausgesetzt. Ein kleiner Teil der Partikel wird durch Diffusion von Ionen auf die Partikel, die die ⁸⁵Kr-Quelle umgeben, entweder positiv oder negativ geladen. Der Anteil der mehrfach geladenen Partikel wächst mit zunehmender Partikelgröße. Nach der Passage der ⁸⁵Kr-Quelle entspricht die Ladungsverteilung der Partikel einer Fuchs-Verteilung und ist insgesamt gesehen neutral. Im Verhältnis 1/5 wird nun der Gasstrom geteilt und zwei DMA⁴ Systemen (ein UDMA⁵ für Partikeldurchmesser von 3-20nm und ein DMA für Durchmesser im Bereich von 20-800nm) zugeführt. In Abhängigkeit von der am DMA angelegten Spannung und dem Volumenfluss durch das DMA gelangen nur (hier positiv) geladene Partikel (vgl. Abbildung 3.1) in einem schmalbandigen Bereich elektrosta-

²Die **Größenverteilung** $\frac{dN(r)}{dr}$ beschreibt die Anzahlkonzentration dN der Partikel mit dem Radius r im Radiusintervall dr um r .

³**APS:** Aerodynamic Particle Sizer

⁴**DMA:** Differential Mobility Analyser; ein DMA separiert Partikel eines bestimmten differentiellen elektrostatischen Mobilitätsbereiches aus der Probenluft (vgl. auch Abbildung 3.1 auf der nächsten Seite).

⁵**UDMA:** Ultrafine Differential Mobility Analyser

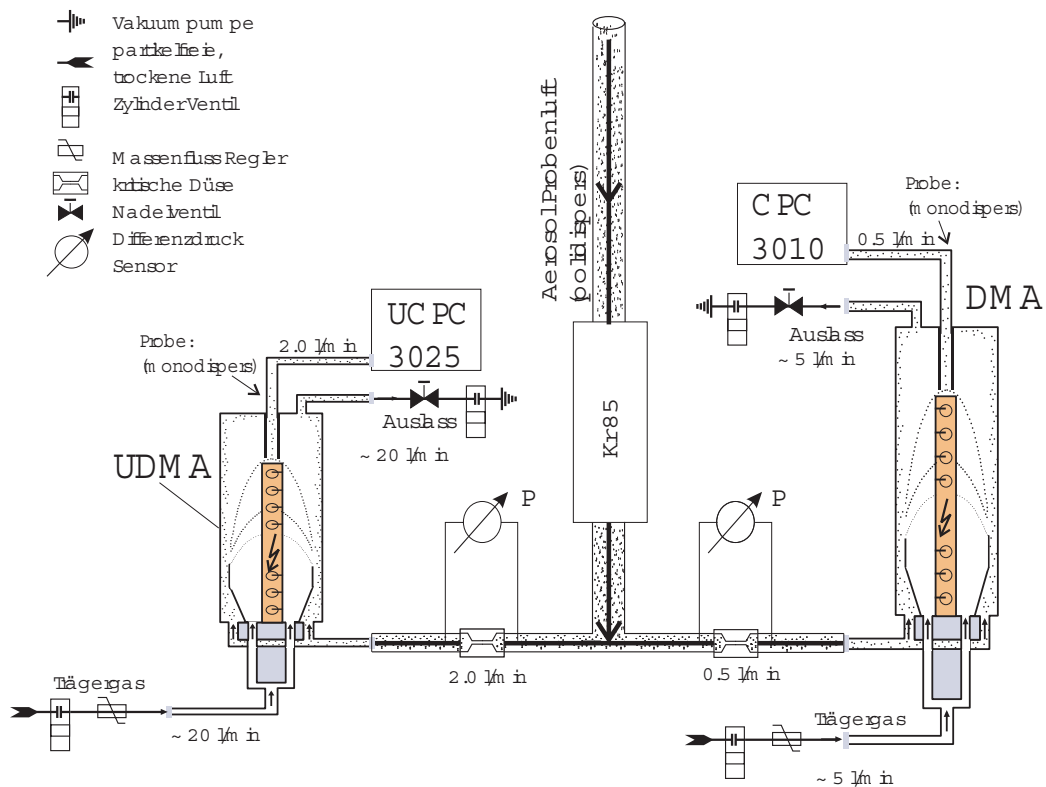


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau des TDMPS (Twin Differential Mobility Particle Sizer). Der Aufbau der beiden DMA (Differential Mobility Analyser) kann ebenfalls dieser Abbildung entnommen werden. Die eingezeichneten Trajektorien der Partikel beschreiben die erwarteten Wege der Partikel im elektrischen Feld im Inneren des DMA zwischen Kathode und Gehäusemantel. Kritische Düsen und Nadelventile dienen dazu, den Volumenfluss der Proben konstant zu halten.

tischer Mobilität Z zu den nachgeschalteten Kondensationskernzählern (UCPC⁶, CPC⁷), die ihre Anzahlkonzentration bestimmen. Für sphärische Partikel gilt für die elektrostatische Mobilität Z :

$$Z = \frac{n_e e C(r, P)}{6\pi\eta_L r} \quad (3.1)$$

n_e =Anzahl der Elementarladungen

e =Elementarladung

C =Slip Korrekturfaktor [Seinfeld & Pandis, 1998]

η_L =Viskosität des Trägergases

P =Druck

r =Partikelradius

Die elektrische Mobilität der (sphärischen) Partikel ist also nur von der Partikelgröße und der Gesamtladung des Partikels, nicht aber von seiner Dichte abhängig.

Das Verhältnis zwischen der gemessenen Konzentration im schmalbandigen Mobilitätsbereich und der Größenverteilung der Partikel im Einlasssystem ist aus der Theorie der „DMA-Transferfunktion“ bekannt. Durch sukzessives Anlegen unterschiedlicher Spannungen am DMA tastet man nacheinander die Anzahlkonzentration von Partikeln unterschiedlicher elektrostatischer Mobilität ab und bestimmt so schließlich durch Wichtung der Messergebnisse mit der DMA-Transferfunktion die der Messung zugrunde liegende Größenverteilung der Partikel [Birmili et al., 1999]. Partikel mit Durchmessern von größer 800nm werden signifikant mit einer mit der Größe zunehmenden Wahrscheinlichkeit mehrfach geladen, so dass eine eindeutige Abbildung der elektrischen Mobilität auf einem bestimmten Radius nicht mehr gegeben ist. Aus diesem Grund bestimmt man die Größenverteilung von Partikeln größer 800nm aerodynamisch mit einem APS-System.

Aerosolpartikel mit unterschiedlichen aerodynamischen Radien⁸ besitzen auch unterschiedliche aerodynamische Relaxationszeiten. Insbesondere können sie in einer Düse einer beschleunigten Bewegung eines Trägergases aufgrund ihrer Trägheit nicht unmittelbar folgen. Beim APS System misst man nun für viele einzelne Partikel die Zeit, die sie benötigen, eine Strecke hinter einer Düse zurückzulegen, die von zwei Laserstrahlen begrenzt wird. Passiert ein Partikel zuerst den einen und dann den zweiten Laserstrahl, so wird das jeweils von ihm

⁶UCPC: Ultrafine Particle Condensation Counter (UCPC): Partikelkondensationszähler für Partikel kleiner 20nm

⁷CPC: Condensation Particle Counter; Partikelkondensationszähler

⁸Der **aerodynamische Radius** eines Partikels X bezeichnet denjenigen Radius eines ideal sphärischen Partikels der Dichte 1, das die gleiche Sedimentationsgeschwindigkeit wie das Partikel X besitzt.

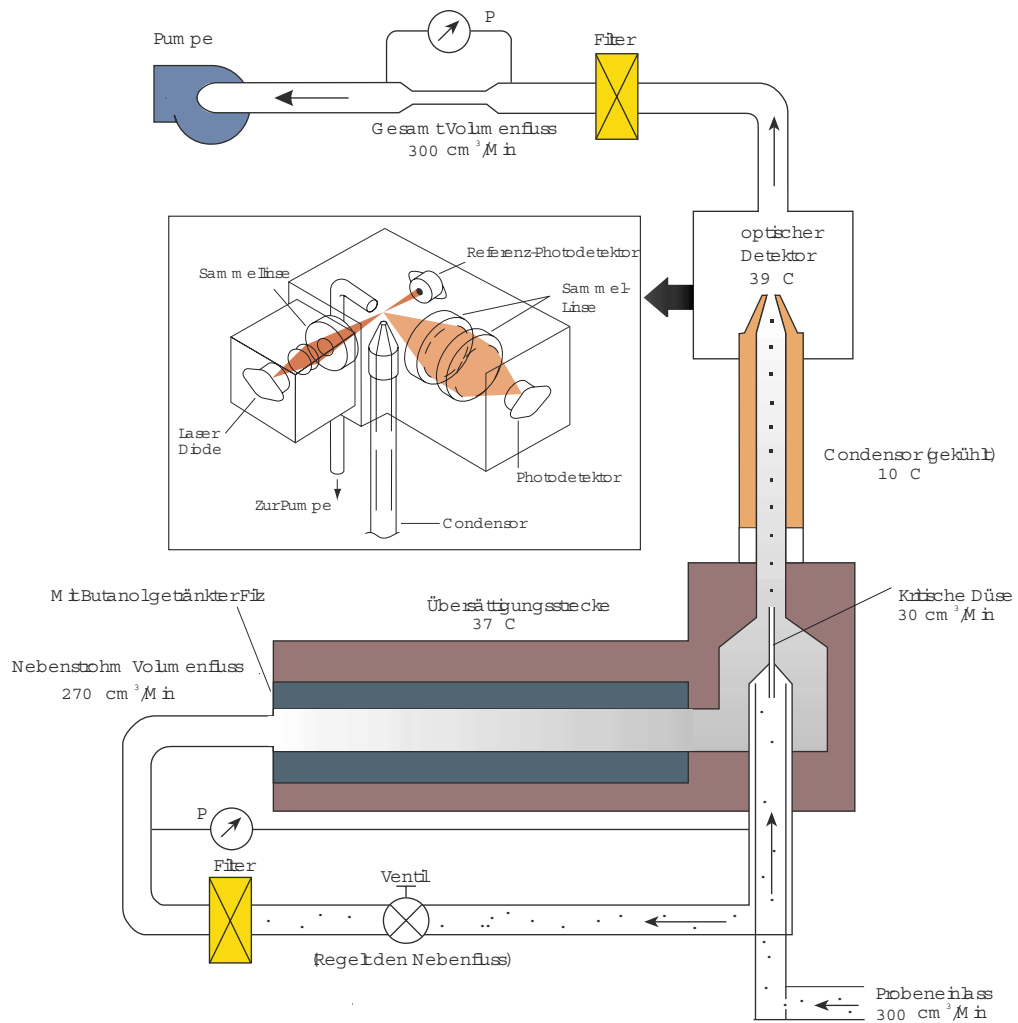


Abbildung 3.2: Schematischer Aufbau eines Kondensationskernzählers (CPC). Partikel werden einer mit Butanol übersättigten Luft ausgesetzt. Das Butanol kondensiert an den Partikeln und lässt diese stark anwachsen. Mit einem optischen Detektor kann anschließend die Anzahlkonzentration der Partikel bestimmt werden.

gestreute Licht mit einem Photodetektor registriert und die Zeitdifferenz der beiden Ereignisse erfasst. Große Partikel benötigen aufgrund ihrer langen Relaxationszeit länger als kleinere Partikel, die der beschleunigten Strömung sehr schnell folgen können. Die Partikelgröße kann mit Hilfe der Bewegungsgleichung aus diesen Messungen bestimmt werden. Aus der Statistik der Einzelmessungen berechnet man die Größenverteilung. Aufgrund der Geometrie des APS sind die zwei Streulichtsignale bei der Passage der Laserstrahlen von Partikeln kleiner als $0,5\mu\text{m}$ nicht voneinander zu trennen, so dass eine Zeitmessung und somit auch eine Größenbestimmung nicht möglich ist.

Sowohl das TDMPS- als auch das APS-System besitzen in ihrem Inneren einen geringeren Luftdruck als die Umgebungsluft. Durch den Abkühlungseffekt, durch Expansion und durch den Druckabfall steigt die rel. Luftfeuchtigkeit an. Dies kann insbesondere für Teilchen kleiner als $0,1\mu\text{m}$ (DMPS), die aufgrund ihrer kurzen thermodynamischen Relaxationszeit (<1 sec) ihre Gleichgewichtsgröße schnell den neuen Umgebungsbedingungen anpassen, zu Fehlern der Größenverteilung führen (vgl. z.B. Hänel [1976], Abschnitt 5.1). Eine weitere Fehlerquelle kann durch die Deformation von Partikeln mit Lösungshülle im beschleunigten Strömungsfeld des APS auftreten, wodurch sie einen scheinbar größeren aerodynamischen Durchmesser besitzen als im ungestörten Zustand. Diese Fehlerquellen werden ausgeschlossen, indem man die Probenluft vor Eintritt in die Messapparaturen in einer Silica-Trockenstrecke trocknet. Aus diesem Grund sind die Messungen der Größenverteilung während LACE 98 für Partikel im trockenen Zustand gültig.

3.2 Wachstumsfaktoren bei 90% und 60% rel. Feuchte und wasserlöslicher Anteil der Aerosolpartikel

Mit Hilfe eines Hygroskopizitäts-Tandem DMA (HTDMA)⁹ wurde der Wachstumsfaktor $\frac{r(f)}{r_0}$ bei der relativen Luftfeuchtigkeit $f = \{0, 60; 0, 90\}$ für Partikel mit Trockenradien r_0 zwischen 50 und 250nm während LACE 98 von einer Arbeitsgruppe des IfT und der Universität Mainz bestimmt [Kandler, 2000]. Das HTDMA besteht aus zwei hintereinandergeschalteten DMAs (vgl. Abschnitt 3.1) mit einer zwischengeschalteten Befeuchtungsstrecke. Das erste DMA separiert Partikel einer bekannten elektrostatischen Mobilität aus der Probenluft, die vorher mit einer Trocknungsstrecke auf rel. Feuchten kleiner als 10% getrocknet

⁹HTDMA: Hygroscopic Tandem Differential Mobility Analyser

wurde. Diese nun in erster Näherung monodisperse Probe mit Stokes-Radien¹⁰ von 50. . .250nm) wird in der Befeuchtungsstrecke wahlweise einer relativen Luftfeuchtigkeit von 60% oder 90% ausgesetzt. Mit Hilfe des nachgeschalteten zweiten DMA und eines CPC wird nun, wie beim DMPS, die Größenverteilung der nun gewachsenen Partikel bestimmt (vgl. 3.1 auf Seite 52). Das Verhältnis des Maximums der resultierenden Größenverteilung zur Größe der monodispersen vom ersten DMA separierten trockenen Partikel ergibt den Wachstumsfaktor der Partikel bei der gewählten Feuchte.

Der wasserlösliche Anteil der Aerosolpartikel wurde mit Hilfe der SoFA-Methode¹¹ [Eichel, 1996; Busch *et al.*, 2002] während LACE 98 von einer Arbeitsgruppe der Universität Mainz bestimmt. Partikel werden hierzu in sieben Größenklassen zwischen 0,4 und 3,7 μ m mit Doppelstufenimpaktoren gesammelt [Jaenicke, 1971]. Die Proben werden anschließend im Labor in reinem Wasser aufgelöst. Die Größenverteilung der verbleibenden wasserunlöslichen Bestandteile der Partikel werden anschließend mit einem Laser-Spektrometer (HSLIS: High Sensitivity Liquid in situ Aerosol Spectrometer [Eichel, 1996]) analysiert. Aus dem Verhältnis des Modalwertes der Größenverteilung $\text{Mod}(r_{\text{ul}})$ der wasserunlöslichen Bestandteile zum Modalwert der ursprünglichen Größenverteilung $\text{Mod}(r)$ wird nun näherungsweise der Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz f_{sm} mit folgender Gleichung 3.2 berechnet:

$$1 - f_{sm} = \frac{V_{\text{ul}}}{V_{\text{p}}} \simeq \left(\frac{\text{Mod}(r_{\text{ul}})}{\text{Mod}(r)} \right)^3 \quad (3.2)$$

V_{ul} =Volumen der wasserunlöslichen Substanz der Partikel

V_{p} =Volumen der Partikel

Die beobachtete Größenverteilung der wasserunlöslichen Residualpartikel ist trimodal, so dass man drei Löslichkeitsklassen der ursprünglichen Partikel unterscheiden kann. Busch *et al.* [2002] unterscheidet für die Messkampagne LACE 98 allerdings nur zwei Fraktionen, die er als „mehr-“ und „weniger-“ hydrophile Partikel bezeichnet.

3.3 Chemische Zusammensetzung

Partikel wurden mit zwei fünfstufigen Impaktoren (Berner-Typ) [Berner & Lürzer, 1980] mit den 50%-Abscheidewahrscheinlichkeitsgrenzen bei den aerodyna-

¹⁰**Stokes-Radius:** Der Stokes-Radius eines Partikels X gibt den Radius eines sphärischen Partikels an, das die gleiche Sedimentationsgeschwindigkeit und Dichte wie das Partikel X besitzt. Der Stokes-Radius eines sphärischen Partikels ist also gleich dem tatsächlichen Radius des Partikels [Seinfeld & Pandis, 1998].

¹¹**SoFA:** Soluble Fraction of Aerosol particles

mischen Radien von $\{0,05; 0,14; 0,42; 1,2; 3,5 \text{ und } 10\mu\text{m}\}$ auf Aluminiumfolien und auf TEDLAR- (Polyvinylfluorid) Folien von einer Arbeitsgruppe des IFT bei einer relativen Luftfeuchte von 60% gesammelt und analysiert.

Mit Hilfe eines Thermodesorptionsverfahrens [Neusiß *et al.*, 2000] wurden die auf Aluminiumfolie abgeschiedenen Partikel auf ihren Anteil an organischem Kohlenstoff (OC) und elementarem Kohlenstoff (EC) untersucht. Die Probe wurde zunächst auf 500°C in inerter Stickstoffatmosphäre erhitzt. In diesem Schritt verdampfen alle OC-Bestandteile der Probe. Anschließend werden nun die in der Gasphase vorliegenden OC-Komponenten mit einem CuO -Katalysator bei 850°C zu CO_2 oxidiert, das anschließend mit einem IR-Detektor spektroskopisch analysiert wird. In einem zweiten Schritt wird die Probe bei 650°C , diesmal aber unter Zugabe von Sauerstoff (O_2), erhitzt, wodurch der noch verbleibende Kohlenstoff (bis auf Carbonate) zu CO_2 oxidiert wird. Das so entstandene CO_2 wird wiederum mit einem IR-Detektor spektroskopisch nachgewiesen. Mittels der Kapillarzonenelektrophorese [Neusiß *et al.*, 2000] werden die auf TEDLAR gesammelten und sodann in deionisiertem Wasser gelösten Proben auf ihre Anionen- (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , O_X) Zusammensetzung hin untersucht. Durch Ionenchromatographie wurde außerdem die Kationenzusammensetzung NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} der Probe bestimmt [Neusiß *et al.*, 2000, 2002]. Die Impaktorfolien wurden vor und nach der Belegung mit Partikeln in einer klimatisierten Mikrowaage bei 60% rel. Luftfeuchte gewogen, um die Massenkonzentration der Partikel in der Probenluft zu bestimmen. Als kritische Bemerkung muß an dieser Stelle festgehalten werden, dass die Wahl, sowohl die Probennahme als auch die Massenkonzentrationsbestimmung bei 60% rel. Luftfeuchtigkeit durchzuführen, sehr unglücklich ist. Betrachtet man die Wachstumskurven von Partikeln für ansteigende und abfallende Luftfeuchte, so zeigt sich gerade im Feuchtigkeitsbereich zwischen 60-80% das Maximum der sog. Hysterese. Die Wachstumskurven für ansteigende und abfallende Feuchte der Partikel unterscheiden sich hier also maximal. Je nachdem, ob die Probe vorher sehr hohen ($\gtrsim 85\%$) Feuchten oder Feuchten $\lesssim 30\%$ ausgesetzt war, wachsen oder schrumpfen Partikel bei gleicher Feuchte auf unterschiedliche Größen. Die Wahl von z.B. 90% rel. Feuchte als Referenzfeuchte wäre also in dieser Hinsicht wesentlich vorteilhafter gewesen.

Teil III

Schließung

Einleitung

Dieser Teil der Arbeit befasst sich mit dem zentralen Aspekt der Schließung der optischen Eigenschaften der atmosphärischen Aerosolpartikel. In der Einleitung wurde der Begriff der Schließung definiert. Es sei nochmals erwähnt, dass hier unter dem Begriff der Schließung, nicht nur der Vergleich der Messungen \mathcal{A} und \mathcal{B} – entweder direkt oder mit Hilfe eines geeigneten physikalischen Modells – verstanden wird. Der Vergleich einer aus der Messgröße \mathcal{A} berechneten Größe \mathcal{A}' mit der Messung \mathcal{B} liefert mathematisch gesprochen den Testentscheid für eine gelungene Schließung zwischen den Größen \mathcal{A} und \mathcal{B} . Eine gelungene Schließung bedeutet vielmehr ein erfolgreiches Zusammenführen von Messungen unterschiedlicher Ausgangsgrößen zu einem konsistenten Bild des Untersuchungsgegenstandes.

Kapitel 4

Messwertevergleich (direkte Schließung)

Der direkte Vergleich der unterschiedlichen Messmethoden der optischen Eigenschaften der Aerosolpartikel war ein zentrales Ziel von LACE 98. Alle Messmethoden liefern Zeitreihen mit unterschiedlicher zeitlicher Auflösung. Bei den hier zum Einsatz kommenden filterbasierten Methoden ändert sich zudem mit der Zeit der Volumenfluss durch den Filter. Anstelle einer einfachen Mittelung tritt aus diesem Grund ein gewichteter Mittelwert der Schwächungskoeffizienten. Zur Berechnung der Gewichtungsfaktoren (vgl. Gleichung 4.1) wurde während LACE 98 der Volumenfluss durch die Filter für das Aerosolphotometer mit Hilfe einer registrierenden Gasuhr bestimmt (theoretische Grundlagen s. *Bundke* [1997]).

$$\overline{\sigma_x} = \frac{\sum_i \sigma_{ix} \mathcal{V}_i}{\sum_i \mathcal{V}_i} \quad (4.1)$$

$\overline{\sigma_x}$ = mit dem Volumenfluss gewichteter Schwächungskoeffizient für ein in i Teilintervalle unterteiltes Zeitintervall: $x \in \{e=\text{Extinktion}, s=\text{Streuung}, a=\text{Absorption}\}$

$\overline{\sigma_{ix}}$ = mittlerer Schwächungskoeffizient im i 'ten Zeitintervall

\mathcal{V}_i = Probevolumen des i 'ten Zeitintervalls

Abbildung 4.1 auf der nächsten Seite zeigt nun anhand der hochaufgelösten PSAP-Messungen des Absorptionskoeffizienten, dass der Einfluss der Volumenflussänderung durch den Filter bei der Probenahme für das Aerosolphoto-

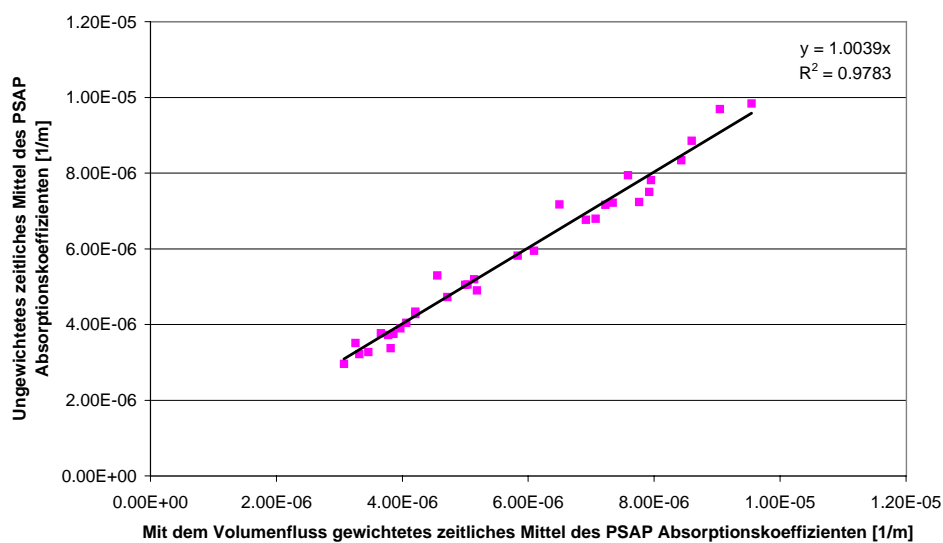


Abbildung 4.1: Vergleich des mit dem Volumenfluss gewichteten Absorptionskoeffizienten mit dem ungewichteten Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel, gemessen mit dem PSAP. Abweichungen von der 1:1-Korrelation zeigen den Einfluss des nicht konstanten Flusses durch den Filter bei der Probenahme für das Aerosolphotometer. Die Steigung von $1,004 \pm 0,02$ ($R^2 = 0,98$) zeigt, dass dieser Einfluss während LACE 98 gering ist. Hiernach verursacht die Verwendung des nicht mit dem Volumenfluss gewichteten, zeitlichen Mittelwertes keinen statistisch nachweisbaren systematischen Fehler.

tometer während der Kampagne LACE 98 klein ist. In Ausnahmefällen beträgt der Fehler maximal 10% und ist somit kleiner als der mit den Verfahren PSAP und Aerosolphotometer verbundene Messfehler des Absorptionskoeffizienten. Hierzu wurde in Abbildung 4.1 der mit dem Volumenfluss durch den Filter für das Aerosolphotometer gewichtete Absorptionskoeffizient gemessen mit dem PSAP (vgl. Gleichung 4.1) über dem ungewichteten Absorptionskoeffizienten des PSAP aufgetragen. Der Umstand, dass die Steigung der Regressionsgeraden von $1,004 \pm 0,02$ ($R^2=0,98$) innerhalb der Fehlergrenze sich nicht von der 1:1-Korrelation unterscheidet, zeigt, dass der Einfluss des nicht konstanten Volumenflusses keinen statistisch nachweisbaren systematischer Fehler der Daten verursacht. Aus diesem Grund ist eine einfache zeitliche Mittelung der Messwerte möglich. Ein Vergleich ist somit auch mit dem IP-Verfahren der Universität Wien möglich, bei dem die ansonsten nötigen Wichtungsfaktoren während der Messkampagne nicht mitbestimmt wurden.

Das bei weitem komplexere Problem stellt der Vergleich der Messungen des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand mit den Messungen des Extinktionskoeffizienten der Partikel bei Umgebungsfeuchte dar, wie sie mit dem Telephotometer oder dem horizontalen Lidar während LACE 98 bestimmt wurden. In Kapitel 5 wird hierfür ein Modell zur Berechnung des Feuchteeffekts des Extinktionskoeffizienten vorgestellt, mit dem der sich anschließende Vergleich erst möglich wurde.

4.1 Absorptionskoeffizient

Ohne Korrektur übersteigt der Absorptionskoeffizient –gemessen mit dem PSAP– um einen mittleren Faktor von 1,79 die Messwerte des Aerosolphotometers und des IP-Verfahrens. Dieser systematische Fehler wird durch die semiempirische Korrektur der PSAP-Messwerte nach *Bond et al.* [1999] kompensiert. Abbildung 4.2 auf der nächsten Seite zeigt einen Vergleich der Messwerte des Absorptionskoeffizienten, die mit den drei während LACE 98 zur Verfügung stehenden Verfahren (Aerosolphotometer, IP-Verfahren, PSAP) gemessen wurden. Die Differenzen der Mittelwerte des Absorptionskoeffizienten der einzelnen Verfahren in Bezug zum gemeinsamen Mittelwert aller drei Verfahren für den gesamten Zeitraum von LACE 98 (vgl. Tabelle 4.1) sind mit Abweichungen kleiner 10% durch die berichteten Fehlerschranken der einzelnen Verfahren erklärbar. Die 1:1-Korrelation zwischen den PSAP und den Aerosolphotometermessungen in Abbildung 4.3 auf Seite 67 mit einer Steigung der Regressionsgeraden von $1,09 \pm 0,04$ bestätigt diese Aussage.

Die semiempirische Korrektur nach *Bond et al.* [1999] besteht aus zwei Schritten. Im ersten Schritt werden fehlerhafte Angaben des Herstellers über Volumen-

Institut	σ_a [1/m]	σ_s [1/m]	ω
IMGF	$4,58E-06 \pm 3,2E-7$	$2,26E-05 \pm 1,4E-6$	$0,827 \pm 0,02$
IfT	$4,12E-06 \pm 1,6E-8$	$2,09E-05 \pm 0,5E-7$	$0,8 \pm 0,01$
UniWien	$5,07E-06 \pm 1,7E-7$		

Tabelle 4.1: Mittelwerte des Absorptionskoeffizienten (σ_a), des Streukoeffizienten (σ_s) sowie der Single Scattering Albedo (ω) von atmosphärischen Partikeln im trockenen Zustand gemessen mit dem Aerosolphotometer (IMGF), dem PSAP bzw. Nephelometer (IfT) und der IP-Methode (UniWien) während LACE 98.

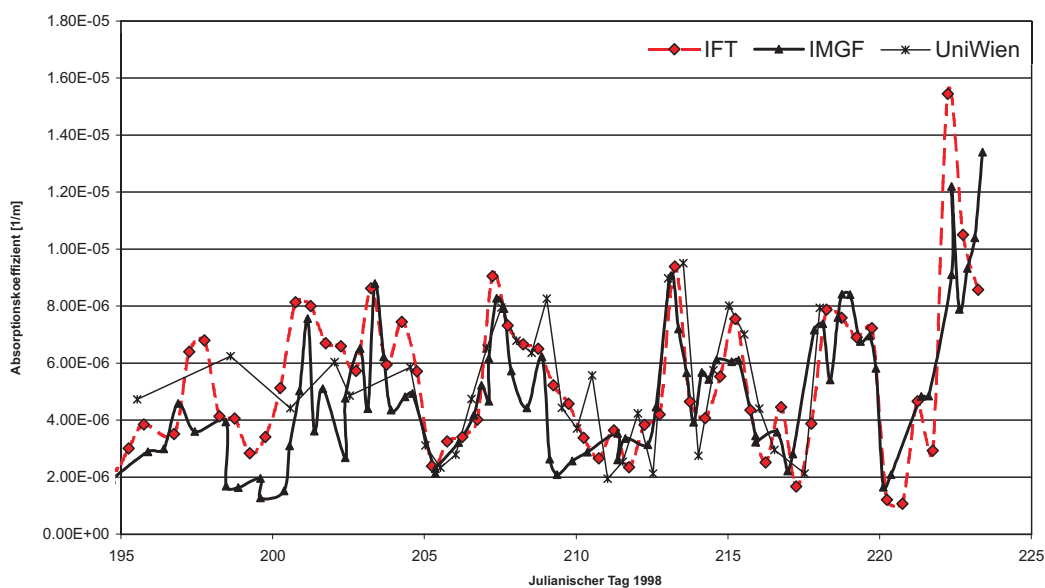


Abbildung 4.2: Vergleich der mit dem Aerosolphotometer (IMGF), dem PSAP und der integrierenden Platte (UniWien) gemessenen Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel während LACE 98

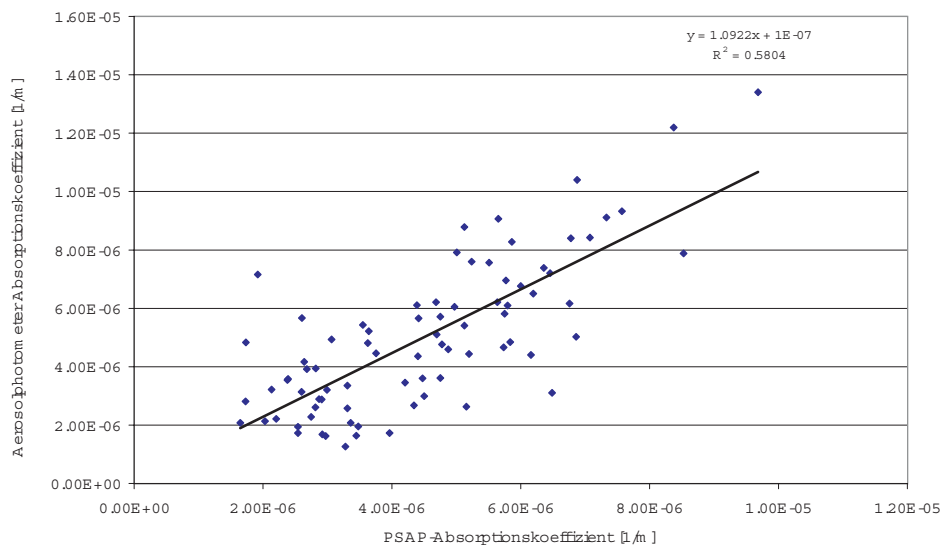


Abbildung 4.3: Streudiagramm des PSAP-Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel mit Korrektur nach *Bond et al.* [1999] und des mit dem Aerosolphotometer gemessenen Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel. Hierbei wurden die PSAP-Messwerte über die Sammelintervalle der Filter für das Aerosolphotometer gemittelt.

fluss und Fläche des von der Lampe beleuchteten Fleckes auf dem Filter (vgl. Abbildung 2.5 auf Seite 44) korrigiert, die bei der Berechnung des Absorptionskoeffizienten eingehen (vgl. Gleichung 2.16 auf Seite 43). Diese so korrigierten Daten bedürfen in einem zweiten Schritt noch einer empirischen Korrektur, wie sie schon im Abschnitt 2.2.3 auf Seite 41 im Falle der IP-Methode vorgestellt wurde. Diese zweite Korrektur ist notwendig, da beim PSAP rückwärts gestreute Strahlung unberücksichtigt bleibt und so unkorrigiert zwangsläufig zu einem erhöhten Absorptionskoeffizienten führt.

Die empirische Korrekturfunktion nach *Bond et al.* [1999] wurde mit künstlichen Submikrometer-Aerosolpartikeln¹ mit Single Scattering Albeden zwischen 0,5 und 1 im Labor bestimmt. Als Referenzwert wurde hierbei der Absorptionskoeffizient als Differenz des Extinktionskoeffizienten und des Streukoeffizienten bestimmt, welche mit einer Extinktionszelle und einem Nephelometer bestimmt wurden. Eine notwendige experimentelle Bestätigung dieser Korrekturfunktion mit natürlichen Aerosolpartikeln im Feldeinsatz fehlte noch und wird nun im Folgenden vorgestellt.

Analog zu *Bond et al.* [1999] wurde im ersten Schritt zunächst der gerätespezi-

¹Als Testaerosol wurden verschiedene Mischungen (0:1,4:1,10:1,20:1,1:0) von Nigrosin ($C_{48}N_9H_{51}$ $\omega = 0,5$) und Ammoniumsulfat ($(NH_4)_2SO_4$ $\omega = 1,00$) bzw. Natriumchlorid (NaCl) verwendet. Große Partikel wurden mit einem Vorabscheideimpaktor (50% Abscheideeffizienz bei $1\mu m$) ausgesondert.

	K_1	K_2
<i>Bond et al.</i> [1999]	$0,02 \pm 0,02$	$1,22 \pm 0,11$
diese Arbeit	$0,03 \pm 0,02$	$1,054 \pm 0,085$

Tabelle 4.2: Vergleich der Regressionskoeffizienten der empirischen Korrekturfunktion des PSAP dieser Arbeit mit den Regressionskoeffizienten nach *Bond et al.* [1999]

fische Korrekturfaktor durch eine Überprüfung der Messungen des Volumenflusses und der Fläche des beleuchteten Fleckes auf dem Filter des PSAP bestimmt.

$$\sigma_a(\text{adj}) = \sigma_a(\text{PSAP}) \times 0,9464 \quad (4.2)$$

$\sigma_a(\text{adj})$ = Absorptionskoeffizient mit gerätespezifischer Korrektur

$\sigma_a(\text{PSAP})$ = unkorrigierter PSAP Absorptionskoeffizient

Im zweiten Korrekturschritt, wird analog zu *Bond et al.* [1999] die empirische Korrekturfunktion bestimmt. Hierzu wird ein multipler Regressionsansatz benutzt, der den mit dem Aerosolphotometer bestimmten Absorptionskoeffizienten als Referenzwert ($\sigma_a(\text{ref})$) verwendet. Sowohl der Absorptions- ($\sigma_a(\text{adj})$) als auch der Streukoeffizient der Partikel (σ_s) kommen als mögliche Einflussgrößen in Betracht und dienen als Regressionsparameter des multiplen Regressionsmodells:

$$\sigma_a(\text{ref}) = \frac{\sigma_a(\text{adj}) - K_1 \sigma_s}{K_2} \quad (4.3)$$

Bond et al. [1999] verwendeten für den Streukoeffizienten in Gleichung 4.3 Messungen eines Nephelometers ohne Korrektur des Streukoeffizienten bzgl. der Nephelometer-Integrationsgrenzen für Streuwinkel kleiner 7° und größer 170° . Die Verwendung der Nephelometermessungen als Eingangsparameter der PSAP-Korrekturfunktion bietet sich insbesondere deswegen an, weil diese kommerziell erhältlichen Geräte bei vielen Messkampagnen, bei denen auch PSAP-Geräte zum Einsatz kommen, ohnehin betrieben werden und somit keine zusätzlichen Kosten entstehen. Um einen direkten Vergleich der in dieser Arbeit bestimmten Korrekturfunktion mit der Korrekturfunktion von *Bond et al.* [1999] zu ermöglichen, wurden in dieser Arbeit ebenfalls die Nephelometermessungen als Regressionsparameter für σ_s aus Gleichung 4.3 verwendet und nicht die ebenfalls mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Streukoeffizienten. Tabelle 4.2 zeigt nun die berechneten K_1 - und K_2 -Werte von *Bond et al.* [1999] und dieser Studie im direkten Vergleich.

Diese Studie zeigt einen erhöhten K_1 -Wert gegenüber den Werten der Bond-Korrektur und somit eine höhere Querempfindlichkeit des PSAP gegenüber dem

Streukoeffizienten der Partikel. Die Filterproben des PSAP wurden während LACE 98 zum Teil sehr lange, bis zu einer optischen Dicke der Filterprobe von 4 belegt, bevor sie ausgewechselt wurden. Die stärkere Querempfindlichkeit gegenüber dem Streukoeffizienten kann so durch multiple Streuung zwischen den Partikeln mit einem resultierenden erhöhten Rückstreuanteil erklärt werden. Ein K_1 -Wert von 0,03 bedeutet, dass 3% der gestreuten Strahlung als absorbierte Strahlung fehl interpretiert werden. Nach der Gaußschen Fehlerfortpflanzung von Gleichung 4.3 verursacht dieser Effekt nach dieser Studie einen Fehler des Absorptionskoeffizienten von 2,8% im Vergleich zu 1,6 % nach der Korrektur von *Bond et al.* [1999]. Der Koeffizient K_2 beschreibt die Reaktion des PSAP in Abhängigkeit vom Absorptionskoeffizienten der Partikel allein. Mit rund 5% fällt diese Korrektur deutlich geringer aus als bei Bond (22%). Abschließend ist allerdings festzuhalten, dass beide Korrekturfunktionen innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmen.

4.2 Streukoeffizient

Ein direkter Zeitreihenvergleich des Streukoeffizienten zwischen den Messungen des Aerosolphotometers und des Nephelometers ist in Abbildung 4.4 einzusehen. Die mit einer zeitlichen Auflösung von einer Minute vorliegenden Messwerte des Streukoeffizienten des Nephelometers wurden über jeweils 12 Stunden gemittelt aufgetragen.

Die Mittelwerte beider Messreihen für die gesamte Messkampagne unterscheiden sich lediglich um 8% (vgl. 4.1). Auf dem 95% Signifikanzniveau kann die Nullhypothese², dass beide Mittelwerte identisch sind, nicht verworfen werden. Die Verläufe der Zeitreihen zeigen eine gute Übereinstimmung während der Messkampagne. Allerdings übersteigt der Streukoeffizient des Aerosolphotometers den des Nephelometers an einigen Tagen um mehr als 300%. Insbesondere zeigt sich dieses Verhalten in der zweiten Hälfte des Experiments. Das Messfeld bei Lindenberg ist umgeben von landwirtschaftlichen Nutzflächen, die hauptsächlich dem Getreideanbau dienen. Ab dem Julianischen Tag 205, 1998 wurden diese Felder zum Teil in der unmittelbaren Nähe des Messfelds abgeerntet, wobei hauptsächlich Supermikrometerpartikel („Bioaeroslpartikel“) in großer Zahl in die Atmosphäre gelangten. Verluste großer Partikel hinter dem PM_{10} -Abscheider³ bei der Probenahme für das Nephelometer, wurden leider nicht quantifiziert. Jedoch zeigen Messungen der Größenverteilung mit den TDMPS/APS-Systemen,

²T-Test: Vergleich der Mittelwerte zweier unabhängiger Stichproben unter der Annahme, dass die Stichproben normalverteilt sind.

³ PM_x : Bezeichnet die Fraktion der Partikel (Particulate Matter) die einen Durchmesser kleiner $x \mu m$ besitzen.

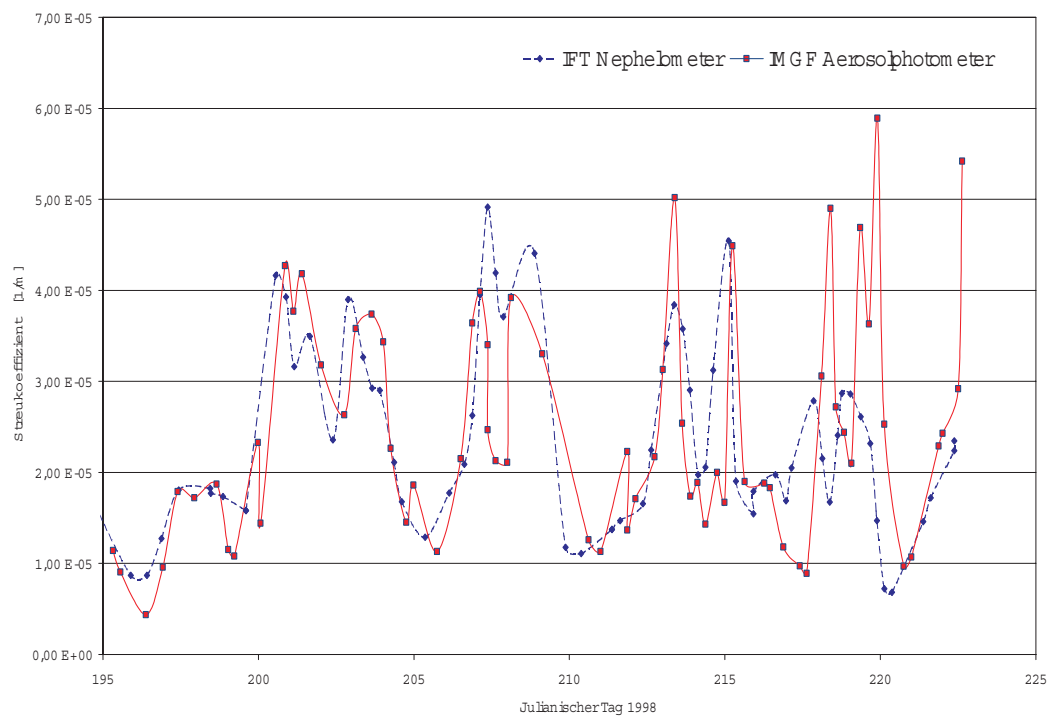


Abbildung 4.4: Zeitreihen des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel gemessen mit dem Nephelometer und dem Aerosolphotometer: In dieser Darstellung wurden Nephelometermessungen jeweils über die Dauer von 12 Stunden gemittelt.

die das gleiche Probenahmesystem wie das Nephelometer verwendeten, während der gesamten Messkampagne keine Partikel mit Durchmessern größer als $4\mu\text{m}$ an (kein Messsignal war größer als das technisch bedingte Kanalrauschen des APS-Systems). Die Verluste im Probenahmesystem können nun für die Unterschiede der gemessenen Streukoeffizienten verantwortlich gemacht werden, zumal man auf den Filtern für das Aerosolphotometer die „Bioaerosolpartikel“ mit typisch leicht grünlich/brauner Farbe erkennen kann. Für einen direkten Vergleich bietet sich also nur die Periode vor dem Tag 205, 1998 an (vgl. Abbildung 4.5). Mit

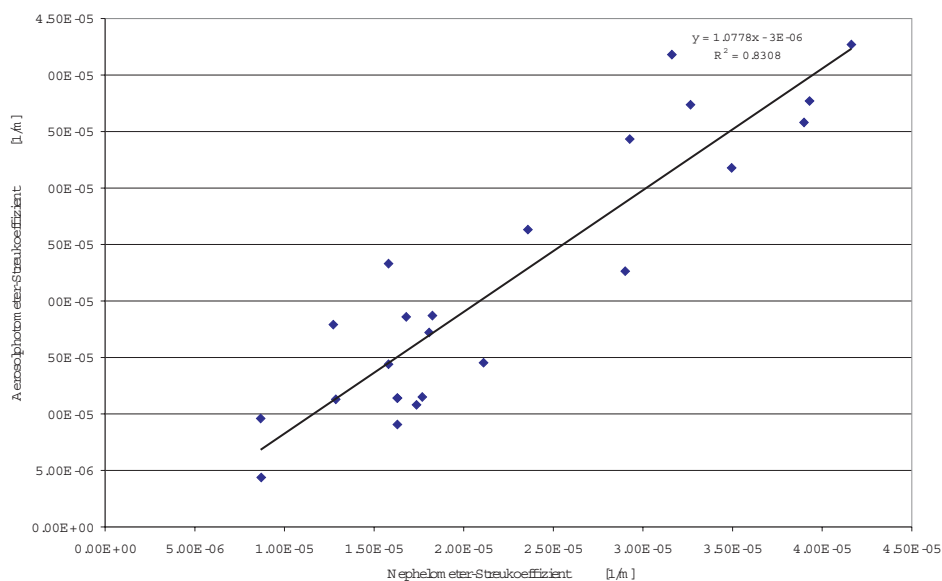


Abbildung 4.5: Streudiagramm des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel gemessen mit dem Nephelometer und dem Aerosolphotometer: Die Messwerte des Nephelometers wurden zeitlich entsprechend der Filterbelegzeiten für das Aerosolphotometer gemittelt.

einem Regressionskoeffizienten von $R^2 = 0,83$ und einer Steigung der Regressionsgeraden von 1,07 ist dies eine relativ gute Korrelation des Streukoeffizienten. *Anderson et al.* [1999] stellen zwei Korrekturen der mit dem Nephelometer gemessenen Streukoeffizienten vor. Die erste kompensiert den Fehler, der durch die konstruktionsbedingt nicht berücksichtigte extreme Vorwärtsstreuung (kleiner 7°) entsteht. Die zweite Korrektur behebt Fehler, die durch die leichte Abweichung der als sekundäre Strahlungsquelle verwendeten Opalglasplatte von der idealen Lambertschen Strahlcharakteristik entsteht (vgl. hierzu Abbildung 2.2 auf Seite 38). Beide Korrekturen sind Funktionen des mittleren Volumenäquivalentradius D_{gv} der aktuellen Größenverteilung. Der Korrekturfaktor ist stets größer als eins und steigt exponentiell mit D_{gv} an. Im Mittel liefert das Aerosolphotometer, wie schon erwähnt, einen um 8% höheren Messwert des Streukoeffizienten als das Nephelometer. Ein mittlerer Volumenäquivalentradius der Partikel

von $0,25\mu\text{m}$ könnte diesen Unterschied erklären. Berechnungen von D_{gv} aus den Messwerten der Größenverteilung⁴ liefern während LACE 98 einen mittleren Volumenäquivalentradius von $D_{gv} = 0,168\mu\text{m}$ mit einem Variabilitätsbereich von $\{0,07 < D_{gv} < 0,27\mu\text{m}\}$. Dies entspricht nach *Anderson et al.* [1999] einem mittleren Korrekturfaktor von 1,04. Der verbleibende Unterschied von 4% ist kleiner als der Messfehler beider Methoden. Die Messungen des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel konnten also im Rahmen der gegebenen Messgenauigkeit geschlossen werden. Partikelverluste, insbesondere von Partikeln mit Durchmessern größer $4\mu\text{m}$ im Einlasssystem des Nephelometers, machten einen Vergleich beider Methoden ab dem Tag 205, 1998 und insbesondere während der Ernte auf den naheliegenden Feldern unmöglich. Die im Rahmen von LACE 98 erhobenen Nephelometermessungen sind dementsprechend auch nur bedingt aussagekräftig. Im nächsten Unterabschnitt, in dem ein Vergleich zwischen den vom Aerosolphotometer direkt bestimmten Single Scattering Albedo der atmosphärischen Partikel und den aus Nephelometer- und PSAP-Messungen berechneten Single Scattering Albedo vorgestellt wird, wird dies verdeutlicht. Eine genaue Charakterisierung der Partikelverluste im Einlasssystem des Nephelometers ist für zukünftige Messkampagnen zwingend notwendig.

4.3 Single Scattering Albedo

Ein direkter Vergleich der Single Scattering Albedo ω der Partikel ist nun aus den PSAP- und Nephelometermessungen (IfT) gemäß Gleichung 4.4 mit den direkt bestimmten Werten der Single Scattering Albedo des Aerosolphotometers (IMGF) möglich (s. Abbildung 4.6).

$$\omega = \frac{\sigma_s}{\sigma_s + \sigma_a} \quad (4.4)$$

Die Single Scattering Albedo der Partikel nimmt während LACE 98 -Werte zwischen $0,68 \dots 0,93$ mit einem Mittelwert von $0,8$ (IfT) bzw. $0,82$ (IMGF) und einer Standardabweichung von lediglich $0,05$ (IfT) bzw. $0,1$ (IMGF) an. Die beobachteten Differenzen betragen im Mittel 9% und sind groß im Vergleich zu den mittleren Fehlergrenzen der Single Scattering Albedo des Aerosolphotometers (2-3%). Im Einzelfall sind in Abbildung 4.6 sogar Differenzen größer 20% zu beobachten. Die Differenzen in der Single Scattering Albedo größer 20% werden durch die Unterbestimmung des Streukoeffizienten mit dem Nephelometer während Zeiten mit Ernteaktivität in der nahen Umgebung des Messfeldes verursacht.

⁴Die Größenverteilung liegt bezüglich des Stokes-Radius (TDMPS) und des aerodynamischen Radius (APS) vor. Für die Berechnung von D_{gv} ist eine Umrechnung dieser Radien in Volumenäquivalentradien notwendig. (aerodynamischer Formfaktor $\kappa=1,2$, Dichte $\rho_0=1,93$) näheres s. hierzu Anhang B.1

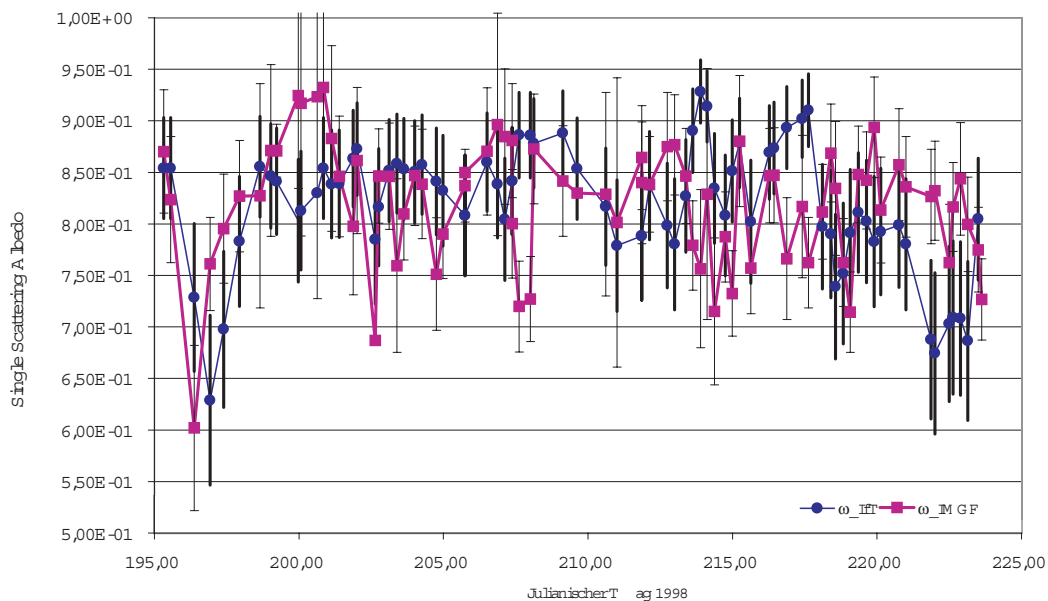


Abbildung 4.6: Vergleich der Single Scattering Albedo (ω) atmosphärischer Partikel gemessen mit dem Aerosolphotometer (ω -IMGF) und berechnet aus Nephelometer- und PSAP- Messungen (ω -IFT).

Wie im Abschnitt 4.2 beschrieben, konnten die während dieser Perioden zu geringen Werte des Streukoeffizienten der atmosphärischen Partikel auf Verluste im Einlasssystem des Nephelometers von „Bioaerosol-Partikeln“ mit Durchmesser größer $4\mu\text{m}$ zurückgeführt werden.

Der Wert der Single Scattering Albedo der atmosphärischen Partikel ist, wie in der Einleitung (vgl. Kapitel 1.3.2) beschrieben, bei gegebener Erdbodenalbedo entscheidend dafür, ob die Partikel abkühlend oder erwärmend im System Erde – Atmosphäre wirken. Die beobachtete Differenz von im Mittel 9% ist bei diesem für das Klima sehr sensiblen Parameter nicht akzeptabel. Bei klimatologischen Fragestellungen ist zudem eine Beschränkung auf Partikeldurchmesser kleiner $10\mu\text{m}$, wie dies hier durch den Einsatz des PM_{10} -High-Flow-Impactors im Falle der Nephelometer- und PSAP-Messwerte durchgeführt wurde, kontraproduktiv. Die beobachteten Unterschiede von kurzfristig bis zu 20% der Single Scattering Albedo bei vorhandenen „Bioaerosolpartikeln“ belegen dies.

4.4 Extinktionskoeffizient der Partikel im feuchten Zustand

Zwischen dem 5. und 7. August 1998 fanden während des Experimentes LACE 98 Parallelmessungen zwischen einem Telephotometer und einem horizontalen Lidar statt. Das Lidar bestimmte hierbei in situ den Extinktionskoeffizienten bodennaher Partikel bei einem Elevationswinkel zwischen 0° und 5° über dem Horizont. Das Lidar wurde am Standort Lindenberg in Richtung Messfeld Falkenberg ausgerichtet, wo ca. 4 km südlich gleichzeitig Messungen in 2 bis 15m Höhe über Grund mit dem Telephotometer der Universität Wien in situ vorgenommen wurden. Die Elevationswinkel von 0° . . . 5° des Lidars entsprechen einer Messhöhe von 50-400m Höhe über Grund in 4km Entfernung, bei einem Höhenunterschied von ca. 50m zwischen den Messstandorten Lindenberg und Falkenberg. Abbildung 4.7 zeigt einen direkten Vergleich der einzelnen Messwerte. Die Messwerte korrelieren gut miteinander; allerdings zeigt das horizontale Lidar im Mittel ca. 30% höhere Messwerte. Im Vergleich zu den Fehlerschranken der beiden Methoden (Telephotometer (10%) und Lidar (20%)) ist der Unterschied nicht vernachlässigbar. Normalerweise erwartet man bei der Auswertung der Lidar-Messungen mit der Slope-Methode sogar eher eine Unterschätzung als eine Überschätzung des Extinktionskoeffizienten. Durch die Forderung der horizontalen Homogenität des Rückstreuoeffizienten innerhalb der Slope-Methode ($d\beta_l/ds = 0$; vgl. theoretische Grundlagen der Slope-Methode in Kapitel 2.3.2) werden insbesondere Messungen bei hoher Partikelkonzentration systematisch aus den Messungen des Lidar ausgesondert, da sie meistens mit einer hohen Variabilität verbunden sind. Die beobachteten höheren Werte des Extinktionskoeffizienten des Lidars könnten darauf zurückgeführt werden, dass beide Verfahren nicht in der gleichen Höhe gemessen haben. Beispielsweise zeigen flugzeuggestützte Nephelometermessungen im Höhenbereich zwischen $0 \dots \approx 500\text{m}$ über Grund [Johnson, 1981] in den Sommermonaten 1976-1978 kein einheitliches Bild der Höhenabhängigkeit des Streukoeffizienten in dieser Höhengschicht. So wurde in Lorient, Frankreich, am 4 Juli 1977 eine Abnahme des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel in der Höhengschicht $0 \dots 500\text{m}$ über Grund um 54% gemessen, wohingegen zwei Tage später eine Zunahme von 47% beobachtet wurde. Es ist also prinzipiell möglich, aber mit den hier zur Verfügung stehenden Daten nicht belegbar, dass der systematische Unterschied der beiden Verfahren allein durch das unterschiedliche Probevolumen erklärt werden kann. Aufgrund dieser Unsicherheit werden die Daten des horizontalen Lidars nicht für die weitere Schließung herangezogen.

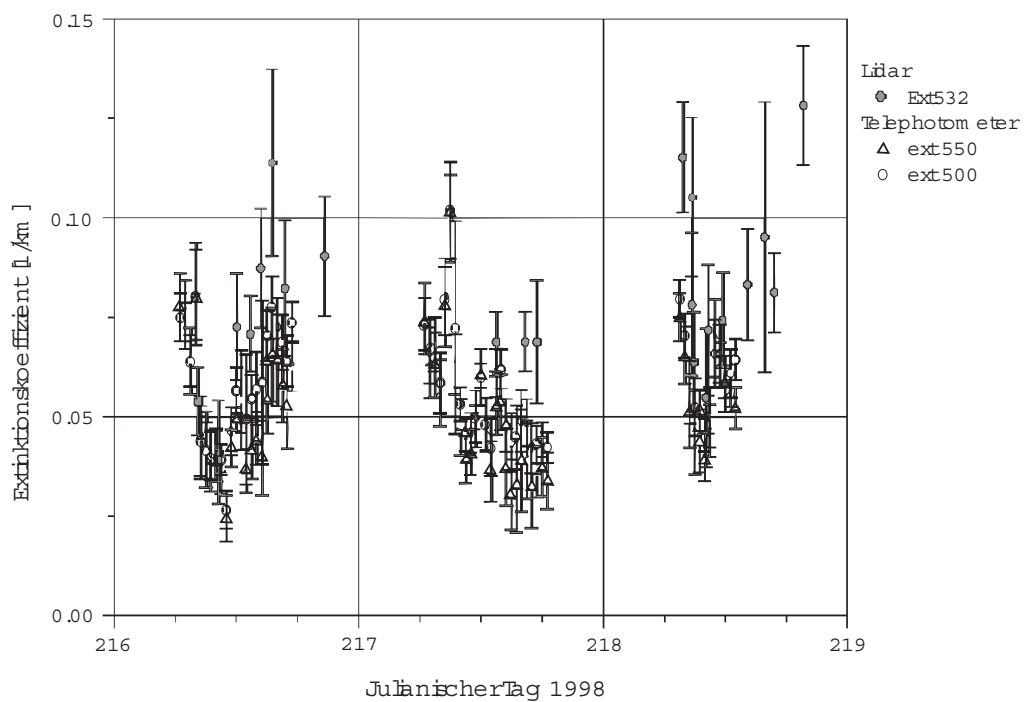


Abbildung 4.7: Messungen des Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel bei Umgebungfeuchte des Telephotometers und des horizontalen Lidars. Die Parallelmessungen fanden zwischen dem 5. und 7. August 1998 statt. Das Lidar der Universität München war in Lindenberg auf einem Hügel ca. 50 m. oberhalb der Umgebung stationiert. Das Telephotometer stand ca. 4 km südlich von Lindenberg, auf dem Messfeld bei Falkenberg.

4.5 Zusammenfassung

- Es konnte gezeigt werden, dass eine rein zeitliche Mittelwertbildung, ohne Berücksichtigung der Volumenflussänderung, während LACE 98 möglich ist. Hierdurch können auch filterbasierte Verfahren mit unbekanntem Volumenfluss durch den Filter in die Schließung einbezogen werden.
- Die semiempirische Korrektur der PSAP Absorptionskoeffizienten nach *Bond et al.* [1999] konnte im Feldexperiment LACE 98 bestätigt werden (s. 4.1).
- Verluste von Partikeln mit Durchmesser größer $4\mu\text{m}$ im Einlasssystem des Nephelometers bedingen große Differenzen des Streukoeffizienten im Vergleich zu den Daten des Aerosolphotometers. Insbesondere ist dies während der Ernteaktivitäten im nahen Umfeld des Messfeldes zu beobachten (s.4.2).
- Mittelwerte des Streukoeffizienten gemessen mit dem Aerosolphotometer und dem Nephelometer unterscheiden sich, bezogen auf die Messkampagne LACE 98, um nur 8%. Die Steigung der Regressionsgeraden beider Messreihen (Perioden ohne Ernteaktivitäten) beträgt 1,07. Nach Anwendung der Korrektur der Nephelometerdaten nach *Anderson et al.* [1999] differieren beide Verfahren lediglich um 3%. Diese Differenz ist geringer als der von beiden Verfahren bekannte Fehler (s.4.2).
- Im Mittel differiert der Wert der Single Scattering Albedo – gemessen mit Hilfe des Aerosolphotometers – und berechnet aus Nephelometer und PSAP Messungen um 9%. Diese Differenz ist groß im Vergleich zu den bekannten Messfehlern der Verfahren. Differenzen größer 20% wurden während Perioden mit Ernteaktivitäten im nahen Umfeld des Messfeldes beobachtet. Als Ursache hierfür konnte die Unterschätzung des Streukoeffizienten durch Partikelverluste im Einlasssystem des Nephelometers identifiziert werden (s. Abschnitt 4.3).

Kapitel 5

Indirekte Schließung

Im vorangegangenen Abschnitt wurde im Rahmen der direkten Schließung ein direkter Messwertevergleich vorgenommen. In diesem Kapitel werden nun zunächst die Messungen des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand und bei Umgebungsfeuchte miteinander verglichen. Diese Schließung der Messergebnisse kann nicht direkt, sondern nur indirekt durchgeführt werden. Indirekt bedeutet hier, dass man ein mikrophysikalisches Modell für die Schließung benötigt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde mit Hilfe von bekannten Modellansätzen ein solches Modell neu entwickelt. Seine theoretischen Grundlagen werden zunächst im Abschnitt 5.1 vorgestellt. Die Eigenschaften dieses Modells werden danach im Rahmen einer Sensitivitätsanalyse im Abschnitt 5.1.2 charakterisiert. Mit der eigentlichen indirekten Schließung wird das Kapitel beendet. Hierzu zählt primär der oben genannte Messwertevergleich in Abschnitt 5.2, zwischen den Messungen des Telephotometers und des Aerosolphotometers. Mit Hilfe des erwähnten mikrophysikalischen Modells werden ebenfalls die optischen Eigenschaften der Partikel berechnet. Zum Abschluss des Kapitels werden in Abschnitt 5.3 die so berechneten optischen Eigenschaften mit den verschiedenen Messungen der optischen Eigenschaften (Extinktions-, Streu-, Rückstreu- und Absorptionskoeffizient, sowie die Single Scattering Albedo) im trockenen Zustand der Partikel geschlossen.

5.1 Kugelschalenmodell: Theoretische Grundlagen

5.1.1 Feuchteabhängigkeit des Extinktionskoeffizienten der Partikel

Partikel besitzen in Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchtigkeit eine wässrige Lösungshülle. Betrachtet man ein Partikel im Gleichgewichtszustand mit der Um-

gebung, so wächst diese wässrige Lösungshülle in grober Näherung exponentiell mit steigender relativer Luftfeuchte an. Bei genauerer Betrachtung des Wachstums der Partikel in Abhängigkeit von der rel. Feuchte stellt man im Bereich zwischen 60 und 80% relativer Luftfeuchtigkeit ein sprunghaftes Anwachsen der Partikel fest. Verursacht wird dieses Verhalten der Partikel durch die Lösung von Salzen in der wässrigen Lösungshülle. Bei rel. Feuchten über 80% sind praktisch alle wasserlöslichen Bestandteile des ursprünglichen Partikels in Lösung gegangen. Das Partikel besitzt dann eine geschlossene Flüssigkeitshülle und kann wie eine Kugel behandelt werden. War ein Partikel rel. Feuchten größer 80% ausgesetzt, so treten bei absinkender Feuchte übersättigte Lösungen in der Lösungshülle auf, so dass die Partikel mehr Wasser als bei steigender Feuchte besitzen (sogenannter Hysteresiseffekt). Bei ca. 60% relativer Luftfeuchte kristallisieren Salze aus der übersättigten Lösung der Hülle aus, wodurch die Partikel sprunghaft schrumpfen. Bei niedrigen rel. Feuchten unter 50% beobachtet man nur eine geringe Wasseraufnahme der Partikel infolge Adsorption von Wasserdampf an den festen Oberflächen, Kondensation in Spalten, Hydratation von Salzen und Kondensation an Schwefelsäure. (vgl. Hänel [1994a] Kap. 5.) Mit dem Größenwachstum der Partikel ist auch eine Veränderung der optischen Eigenschaften verbunden. So vergrößert sich beim Wachstum nicht nur der geometrische Streu- und Absorptionsquerschnitt der Partikel, sondern verringert sich u.a. gleichzeitig der Brechungsindex der Partikel.

Im Rahmen des LACE 98 –Schließungsexperimentes sollen Messungen des Extinktionskoeffizienten luftgetragener Partikel bei Umgebungsfeuchte mit Messungen des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand verglichen werden. Frühere Studien, wie die von Hänel [1976], beschreiben den Feuchteeffekt für verschiedene Aerosoltypen in Zentraleuropa. Während LACE 98 wurden alle wichtigen mikrophysikalischen und chemischen Partikeleigenschaften, die für eine Berechnung des Feuchteeffekts der optischen Eigenschaften notwendig sind, in zeitlich hochaufgelöster Form erfasst. Aus diesem Grund kann im Rahmen dieser Arbeit bei der Modellierung des Feuchteeffektes auf Annahmen über die mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel fast vollständig verzichtet und statt dessen auf Messungen zurückgegriffen werden. In den folgenden Unterkapiteln werden das mikrophysikalische Modell zur Berechnung der optischen Eigenschaften der Partikel in Abhängigkeit von der rel. Luftfeuchte, eine Sensitivitätsstudie dieses Modells und abschließend die eigentlichen Schließungsergebnisse beschrieben.

Modellkonzept

Eine Modellierung der Streuung und Absorption der Strahlung durch Partikel ist ohne Annahmen und Idealisierungen nicht möglich. Vorrangiges Prinzip einer je-

den Schließung muss jedoch sein, Annahmen zu vermeiden, wo immer dies möglich ist. LACE 98 ermöglicht mit der Fülle der gemessenen Partikeleigenschaften in zeitlich hochaufgelöster Form diesem vorrangigen Prinzip der Schließung weitestgehend treu zu bleiben. Abbildung 5.1 zeigt die angenommene Struktur des für die Rechnungen zugrunde liegenden Modellpartikels. Es besteht aus einem kugelförmigen, homogenen und wasserunlöslichen Kern, der umgeben ist von einer wässrigen Lösung als Hülle. Dieser Modellansatz stellt eine Verbesserung des normalerweise bei vergleichbaren Rechnungen zum Streuverhalten der Partikel zu Grunde gelegten Modells einer homogenen Kugel nach *Mie* [1908] dar. Die theoretischen Grundlagen dieses Modellansatzes sind bei *Bohren & Huffman* [1983] einzusehen. *Sloane* [1983] zeigte, dass direkte Messungen der Schwächungskoeffizienten sehr gut mit Modellrechnungen, die diesen verbesserten Modellansatz verwendeten, in Übereinstimmung zu bringen sind – besser als mit der klassischen Mie-Theorie.

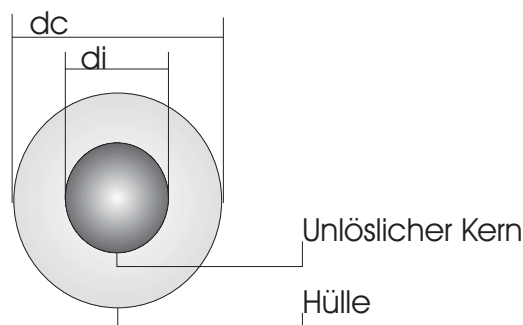


Abbildung 5.1: Das idealisierte Modellpartikel besteht aus einem wasserunlöslichen, kugelförmigen Kern, der konzentrisch umgeben ist von einer wässrigen Lösung des wasserlöslichen Anteils des vormals trockenen Partikels.

Der Extinktionskoeffizient der Partikel bei der Wellenlänge λ ($\sigma_{eM\lambda}$) wird nun mit folgender Gleichung berechnet (Index „M“ für Modell):

$$\sigma_{eM\lambda} = \frac{1}{\Delta\mathcal{V}} \sum_{j=1}^{\Delta N} \kappa_{e\lambda j} \pi r_j^2 \quad (5.1)$$

$\Delta\mathcal{V}$ =betrachtetes Luftvolumen

ΔN =Anzahl der Partikel im Volumen $\Delta\mathcal{V}$

$\kappa_{e\lambda j}$ =Wirkungsfaktor der Extinktion des j'ten Partikels mit dem Volumenäquivalentradius r_j bei der Wellenlänge λ

Der Volumenäquivalentradius ist definiert durch:

$$r_j \equiv \sqrt[3]{\frac{3}{4\pi} V_{pj}} \quad (5.2)$$

$$V_{pj} = \text{Volumen des Partikels } j$$

Nach Gleichung 5.1 ist der Extinktionskoeffizient die Summe der einzelnen Extinktionsquerschnitte eines jeden Partikels pro Volumeneinheit. Der Extinktionsquerschnitt ist hierbei definiert als das Produkt des geometrischen Abschattungsquerschnittes bzgl. des Volumenäquivalentradius (πr_j^2) des Partikels j mit dem Wirkungsfaktor der Extinktion $\kappa_{e\lambda j}(dc, di, n_c - ik_c, n_{sm} - ik_{sm})$. *Bohren & Huffman* [1983] veröffentlichten das FORTRAN-Programm „BHCOAT“ zur Berechnung von $\kappa_{e\lambda}$ für ein Kugelschalen-Modellpartikel. Dieser Algorithmus wurde für die Modellrechnungen in dieser Arbeit verwendet. Als Eingangsparameter werden neben den Durchmesser dc und di der Hülle und des wasserunlöslichen Kerns des Partikels auch die komplexen Brechungsindizes des wasserunlöslichen Kerns ($n_c - ik_c$) und der umgebenden Hülle ($n_{sm} - ik_{sm}$) benötigt. Diese Brechungsindizes werden mit Hilfe eines separaten Modells für das Wachstum der Partikel in Abhängigkeit von der rel. Feuchte und unter Verwendung der Lorentz-Lorenz-Mischungsregel aus den folgenden mit Messungen bestimmten Partikeleigenschaften berechnet: Hierzu gehören der Trockenradius, der Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz, der Hygroskopizitätsparameter, der komplexe Brechungsindex der trockenen Partikel, sowie die rel. Feuchte der Umgebungsluft. (s. hierzu Abschnitt 5.1.1 auf Seite 83)

Bei bekannter Größenverteilung und bei bekanntem Wachstumsverhalten jedes einzelnen Partikels kann nun die Feuchteabhängigkeit des Extinktionskoeffizienten mit folgendem Faktor beschrieben werden:

$$\xi_e(f) = \frac{\sigma_e(f)}{\sigma_e(f=0)} = \frac{\sum_{j=1}^{\Delta N} \kappa_{e\lambda j} \pi r_{fj}^2}{\sum_{j=1}^{\Delta N} \kappa_{e\lambda j0} \pi r_{0j}^2} \quad (5.3)$$

Hierbei bezeichnet r_{0j} den Volumenäquivalentradius des j 'ten trockenen Partikels und r_{fj} den Volumenäquivalentradius des j 'ten Partikels bei der rel. Feuchte f . Messungen der Größenverteilung liegen nicht als Funktion des Volumenäquivalentradius, sondern als Funktion des Stokes-Radius (TDMPS) und des aerodynamischen Radius vor (APS). Diese können unter Annahme einer Dichte und eines aerodynamischen Formfaktors der Partikel jedoch durch numerische Lösung mehrerer impliziter Gleichungen in Volumenäquivalentradien umgerechnet werden (näheres siehe hierzu im Anhang B.1). Leider liegen keine Messungen des aerodynamischen Formfaktors und der Dichte der Partikel im trockenen Zustand

während LACE 98 vor, so dass für diese Parameter auf Literaturwerte zurückgegriffen werden muss.

Die Größenverteilung liegt nur in Form von diskreten Größenklassen vor. Die Summe über alle Teilchen aus Gleichung 5.3 muss deshalb in eine Summe über alle Größenklassen umgewandelt werden. Es wird vereinfachend angenommen, dass alle N_C Partikel einer Klasse C die gleiche chemische Zusammensetzung und Größe mit dem Radius r_C besitzen.

$$\xi_e(f) = \frac{\sigma_e(f)}{\sigma_e(f=0)} = \frac{\sum_C N_C \kappa_{e\lambda C} \pi r_{fC}^2}{\sum_C N_C \kappa_{e\lambda C0} \pi r_{0C}^2} \quad (5.4)$$

Wachstum der Partikel als Funktion der rel. Feuchte

Der Wachstumsfaktor r_f/r_0 , also das Verhältnis zwischen dem Volumenäquivalentradius des Partikels bei der Feuchte f und seinem Radius¹ im trockenen Zustand, muss für jede Klasse C in Abhängigkeit von den zeitlich veränderlichen physiko-chemischen Eigenschaften der Partikel in Form von A_{kf} und B_f (Krümmungs- und Hygroskopizitätsparameter), die im folgenden Abschnitt noch näher erläutert werden, mit einem separaten Modell berechnet werden. Zur Berechnung des Radius der Partikel bei der Feuchte f wird ein Modell verwendet, bei dem das betrachtete Partikel im Gleichgewicht mit seiner Umgebung steht (Gleichgewichtsmodell). Als Grundgleichung wird in diesem Modell die Kelvin-Köhler-Gleichung 5.5 verwendet [Hänel, 1976, 1984, 1987b; Fitzgerald & Hoppel, 1984], die die rel. Feuchte f_o über einer gekrümmten Oberfläche eines Partikels mit dem Radius r_f beschreibt. Ist das Partikel im Gleichgewicht mit seiner Umgebung, so muss die Feuchte oberhalb der Partikeloberfläche identisch mit der rel. Feuchte der Umgebung sein. Wäre dies nicht der Fall, so würde im Falle einer im Vergleich zur Umgebungsfeuchte niedrigeren rel. Feuchte oberhalb der Partikeloberfläche das Partikel wachsen und im umgekehrten Fall – einer höheren rel. Feuchte – das Partikel Wasser an die Umgebung verlieren und infolgedessen schrumpfen. Zur Berechnung des Gleichgewichtsradius des Partikels setzt man in der Kelvin-Köhler-Gleichung die Feuchte über der Oberfläche gleich der Umgebungsfeuchte (vgl. Gleichung 5.6) und löst diese Gleichung nach $\frac{r}{r_0}$ auf. Gleichung 5.6 ist implizit bezüglich $\frac{r}{r_0}$ und wird hier mit Hilfe der Sukzessiven-Approximation numerisch gelöst.

$$f_o = \exp\left(\frac{A_{kf}}{\frac{r_f}{r_0} r_0}\right) a_w \quad ; \quad a_w = \exp\left(-\frac{B_f}{\left(\frac{r_f}{r_0}\right)^3 - 1}\right) \quad (5.5)$$

¹Im Folgenden werden die Begriffe „Radius“ und „Volumenäquivalentradius“ synonym verwendet

$$f = f_o \quad (5.6)$$

Hierbei bezeichnet $A_{kf} \approx A_0$ den Krümmungsparameter, B_f den Hygroskopizitätsparameter und a_w die Aktivität des Wassers. Der Parameter A_0 ist der Grenzwert des Krümmungsparameters bei unendlicher Verdünnung der Wasserhülle des Partikels. In guter Näherung gilt: [Hänel, 1987b]

$$A_0 = \frac{5,0871 \times 10^{-5} [cmK]}{T} - 6,631 \times 10^{-8} [cm] \quad (5.7)$$

T = absolute Temperatur in [K]

Der Hygroskopizitätsparameter B_f ist eine komplexe Funktion der Aktivität des Wassers a_w und der chemischen Zusammensetzung. In stark vereinfachter Näherung gilt $B_f = B_0 a_w$, wobei B_0 der sogenannte Aktivierungsparameter ist. Die Approximation $B_f = B_0 a_w$ berücksichtigt nicht den oben schon erwähnten Hysteresiseffekt. Eine Einbindung des Hysteresiseffektes bedürfte allerdings auch der detaillierten Kenntnis der „Vergangenheit“ des Wachstums der Partikel als Funktion der rel. Feuchte. Insbesondere sollte man wissen, ob das Partikel zuvor nahezu wasserdampfgesättigter Luft ($f \geq 0,90$) oder sehr trockener Luft ($f \leq 0,30$) ausgesetzt war. In der Regel ist die „Vergangenheit des Partikels“ nicht bekannt. Messungen von Hänel [private Mitteilungen] zeigten, dass ein Partikel „praktisch jeden Punkt im Bereich innerhalb der Hysterisis im Diagramm ($\frac{r}{r_0}$ vs. f) als Zustand einnehmen kann“. Die hier verwendete Approximation dürfte aus diesem Grund statistisch gesehen mit dem geringsten Fehler verbunden sein. Im Rahmen des LACE 98 –Schließungsexperimentes konnte der Aktivierungsparameter B_0 sowohl aus der chemischen Zusammensetzung als auch aus den Messungen des Wachstumsfaktors bei 90% rel. Luftfeuchtigkeit berechnet werden. Näheres siehe Anhang B.3 auf Seite 205 (vgl. hierzu auch Abschnitte 3.2 auf Seite 56 und 3.3 auf Seite 57).

Abbildung 5.2 zeigt zwei Zeitreihen des Aktivierungsparameters, berechnet aus den oben genannten unabhängigen Messungen im direkten Vergleich.

Im Mittel sind die aus der chemischen Zusammensetzung berechneten Aktivierungsparameter (B_0) um ca. 15% höher als die vergleichbaren Werte des aus den Wachstumsfaktoren berechneten Aktivierungsparameters. Die Berechnung des Aktivierungsparameters aus der chemischen Zusammensetzung ist mit einem Fehler von ca. 20-25% nach der Gausschen Fehlerfortpflanzung (vgl. Gleichung B.15 im Anhang) verbunden. Für die folgenden Berechnungen wird ausschließlich die aus den Wachstumsfaktoren berechnete Zeitreihe des Aktivierungspara-

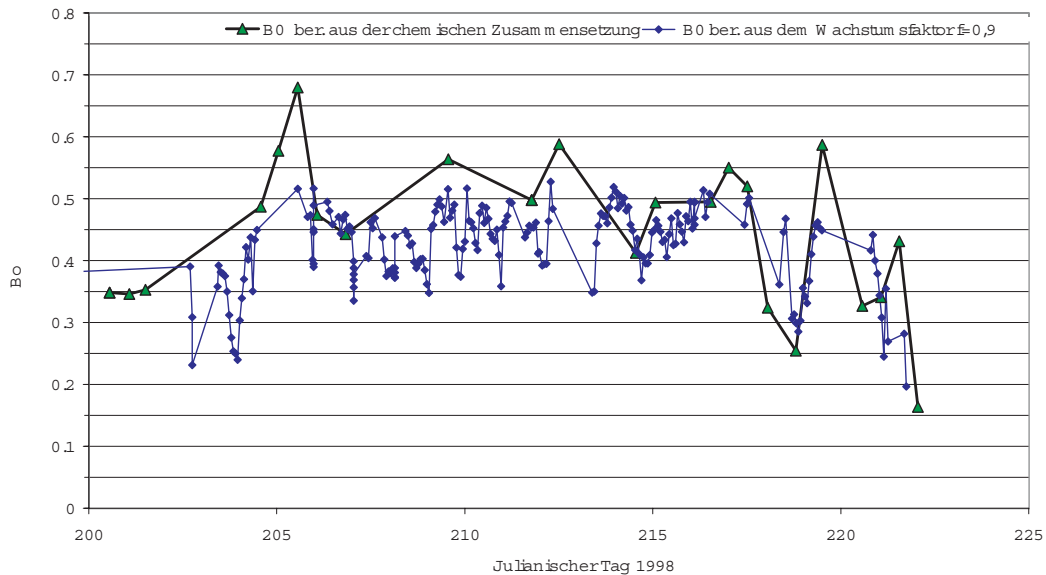


Abbildung 5.2: Aktivierungsparameter atmosphärischer Partikel berechnet (a) aus der chemischen Zusammensetzung der Partikel und (b) aus dem Wachstumsfaktor der Partikel bei 90% rel. Feuchte (HTDMA)

meters verwendet, da zum einen der mit diesem Verfahren verbundene Fehler² von 6,5-10% kleiner und zudem die zeitliche Auflösung der Zeitreihe höher ist als bei der aus der chemischen Zusammensetzung berechneten Zeitreihe des Aktivierungsparameters.

Mischungsregel zur Berechnung des komplexen Brechungsindexes des wasserunlöslichen Kerns und der wässrigen Hülle des Modellpartikels

Als letzte unbekannte Größen müssen noch die komplexen Brechungsindizes des Kerns und der wässrigen Hülle des Partikels berechnet werden. Der komplexe Brechungsindex einer Mischung verschiedener Substanzen kann je nach Art der Mischung mit verschiedenen Mischungsregeln berechnet werden. So kann man beispielsweise mit der Bruggemann-Gleichung oder der Maxwell-Garnett-Gleichung den Brechungsindex einer Mischung aus homogenen Kugeln, die klein gegenüber der betrachteten Wellenlänge des Lichtes sind, berechnen [Hänel, 1994a]. Im Rahmen dieser Arbeit wird allerdings eine molekulare Mischung der chemischen Substanzen angenommen. Der komplexe Brechungsindex $n - ik$ einer molekularen Mischung verschiedener chemischer Substanzen i , mit be-

²Angenommen wurden bei der Fehlerrechnung ein Fehler von 10% bei der Messung von $\frac{r}{r_0}$ und 1% Toleranz bei der Regulierung der Feuchte in der Befeuchtungstrecke des HTDMA bei einem Sollwert der relativen Luftfeuchte von 90%.

kanntem Brechungsindex $n_i - ik_i$ berechnet sich gemäß der Lorentz-Lorenz-Mischungsregel wie folgt:

$$\begin{aligned} R^* &= \sum_i R_i^* \frac{V_i}{V} \\ A^* &= \sum_i A_i^* \frac{V_i}{V} \\ R^* &= \frac{(n^2+k^2)^2+n^2-k^2-2}{(n^2+k^2)^2+4(n^2-k^2+1)} \\ A^* &= \frac{nk}{(n^2+k^2)^2+4(n^2-k^2+1)} \end{aligned} \quad (5.8)$$

$$\begin{aligned} R_i^* &= R(n_i, k_i) \\ A_i^* &= A(n_i, k_i) \end{aligned} \quad (5.9)$$

i =Index der chemischen Substanz

n, k =Real und Imaginärteil des Brechungsindex der Mischung

n_i, k_i =Real und Imaginärteil des Brechungsindex der Substanz i

V_i =Volumen der Substanz i

V =Gesamtvolumen der Mischung

In der hier verwendeten Näherung besteht die wässrige Hülle des Partikels aus einer Mischung von Wasser (Index „ w “) und wasserlöslicher Substanz (Index „ sm “) mit den Brechungsindizes $n_{sm} - ik_{sm} = 1,55 - 0,001i$ und $n_w - ik_w = 1,34 - 0i$ bei der Wellenlänge $\lambda = 700\text{nm}$ [Shettle & Fenn, 1979]. (Die Brechungsindizes der wasserlöslichen Substanz variieren um ca. 10% von diesem Mittelwert.) Bei einer molekularen Mischung der wässrigen Lösungshülle kann Volumenadditivität der Teilvolumina der chemischen Substanzen angenommen werden. Die Lorentz-Lorenz-Mischungsregel (Gleichungen 5.8,5.9) nimmt für die wässrige Partikelhülle folgende Gestalt an:

$$\begin{aligned} R_s^* &= R_w^* \frac{V_w}{V_w+V_{sm}} + R_{sm}^* \frac{V_{sm}}{V_w+V_{sm}} \\ A_s^* &= A_w^* \frac{V_w}{V_w+V_{sm}} + A_{sm}^* \frac{V_{sm}}{V_w+V_{sm}} \end{aligned} \quad (5.10)$$

$$\begin{aligned} V_w &= \frac{4}{3}\pi r_0^3 \left(\left(\frac{r_f}{r_0} \right)^3 - 1 \right) \\ V_{sm} &= \frac{4}{3}\pi r_0^3 f_{sm} \end{aligned}$$

s =Index der wässrigen Hülle

f_{sm} =Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz der trockenen Partikels

Gleichungssystem 5.10 kann nach $n_s - ik_s$ –dem komplexen Brechungsindex der wässrigen Hülle– gelöst werden.(vgl. Gleichung 5.13 weiter unten im Text).

Als letzter Parameter wird nun noch der Brechungsindex $n_c - ik_c$ des wasserunlöslichen Kerns (Index „c“) aus den mit dem Aerosolphotometer gemessenen komplexen Brechungsindex $n_0 - ik_0$ der trockenen Partikel (Index „0“) berechnet. Trockene Partikel sind formal gesehen Mischungen aus wasserlöslicher und -unlöslicher Substanz. Für diese Mischung nimmt die Lorentz-Lorenz-Mischungsregel folgende Form an:

$$\begin{aligned} R_0^* &= R_s^* f_{sm} + R_c^* (1 - f_{sm}) \\ A_0^* &= A_s^* f_{sm} + A_c^* (1 - f_{sm}) \end{aligned} \quad (5.11)$$

Auflösen nach den unbekanntem R_c^* und A_c^* liefert:

$$\begin{aligned} R_c^* &= \frac{R_0^* - R_s^* f_{sm}}{1 - f_{sm}} \\ A_c^* &= \frac{A_0^* - A_s^* f_{sm}}{1 - f_{sm}} \end{aligned} \quad (5.12)$$

Die Lösung der Gleichungen 5.10 bis 5.12 nach n und k hat folgende Gestalt: [Hänel ,private Mitteilungen]

$$\begin{aligned} n(R^*, A^*) &= \frac{\sqrt{D\sqrt{D^2+324(A^*)^2}}}{\sqrt{2}\sqrt{(1-R^*)^2+36(A^*)^2}} \\ k(R^*, A^*) &= \frac{9\sqrt{2}A^*}{\sqrt{(1-R^*)^2+36(A^*)^2}\sqrt{D+\sqrt{D^2+324(A^*)^2}}} \end{aligned} \quad (5.13)$$

mit

$$D(R^*, A^*) = (1 - R^*)(1 + 2R^*) - 72 (A^*)^2$$

Mit Hilfe dieses Satzes von Modellgleichungen kann nun der Faktor ξ_e (s. Gleichung 5.4) berechnet werden. Die Umrechnung des Extinktionskoeffizienten bei Umgebungsfeuchte ($\sigma_{e \text{ ambient}}$) in den Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand erfolgt mit folgender Gleichung 5.14.

$$\sigma_{e0} = \frac{\sigma_{e \text{ ambient}}}{\xi_e} \quad (5.14)$$

5.1.2 Fehlerbetrachtung und Sensitivitätsstudie

Tabelle 5.1 auf Seite 88 zeigt den Modellfehler von $\xi_e = \frac{\sigma_e(f)}{\sigma_e(f=0)}$ in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f . In der ersten Spalte findet sich der prozentuale Gesamtfehler von ξ_e , der aus den in der untersten Tabellenzeile notierten Messfehlern der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der partiellen Fehler der einzelnen Einflussgrößen auf das Endergebnis ist in den folgenden fünf Spalten angegeben. (B_0 =Hygroskopizitätsparameter, $n_0 - ik_0$ =komplexer Brechungsindex der trockenen Partikel, f_{sm} =Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz und

f rel. Feuchtigkeit). In der letzten Spalte ist noch zusätzlich der relative Einfluss der Radiuskorrektur der APS/DMPS Größenverteilungsmessung auf ξ_e angegeben, der sich aus der Differenz des Modellwertes von ξ_e mit und ohne Radiuskorrektur berechnet.

Die Höhe des Fehlers der einzelnen Modellrechnungen hängt stark von den aktuellen mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel ab. Aus diesem Grund wird die Sensitivitätsstudie auf der Basis von Einzelmodellrechnungen mit aktuellen Werten der mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel während der Messkampagne LACE 98 und nicht durch einfache Variation der Feuchte für einen Aerosoltyp mit konstanten mikrophysikalischen Eigenschaften durchgeführt. Die Berechnung von Medianwerten der Modellfehler aus diesem Datensatz bietet sich für die statistische Charakterisierung der Modellfehler an, da der Median im statistischen Sinne robust und weniger von Ausreißern beeinflusst wird wie z.B. der Mittelwert.

Der Gesamtfehler³ des Modells wächst exponentiell mit zunehmender rel. Feuchte an. Der Median des Modellfehlers beträgt bei rel. Feuchten unter 30% ca. 1% und steigt auf 40% bei rel. Feuchten zwischen 95 und 97,5% an. Bei rel. Feuchten unter 70% ist der Gesamtfehler des Modells stets kleiner als 5%. Bei sehr hohen Feuchten (größer 90%) wird der Gesamtfehler dominiert von dem Messfehler der rel. Feuchte. Schon kleine Feuchteänderungen wirken sich in diesem Bereich stark auf den Wachstumsfaktor der Partikel aus. Bei Feuchten unter 90% ist dieser partielle Fehler ansonsten stets kleiner als 5%. Bei Feuchten unter 50% wird der Modellfehler bestimmt durch den Fehler des Realteils des Brechungsindex der trockenen Teilchen und durch den Fehler bei der Bestimmung des Aktivierungsparameters B_0 . Fehler bei der Bestimmung des Imaginärteils der trockenen Partikel tragen mit 1% nur untergeordnet bei rel. Feuchten über 90% zum Gesamtfehler bei. Bei der Berechnung von ξ_e heben sich Fehler bei der Bestimmung der absoluten Anzahlkonzentration der Größenverteilung durch die Verhältnisbildung (vgl. Gleichung 5.4) gegeneinander auf, wenn dieser systematische Fehler alle Größenklassen (wie hier angenommen) gleich stark betrifft. Wenn sich jedoch die Form der Größenverteilung durch Messfehler ändert, also wenn zum Beispiel die Anzahlkonzentration großer Partikel systematisch unterschätzt wird, würde dies direkte Auswirkungen auf das Endergebnis haben. Die letzte Spalte der Tabelle 5.1 auf Seite 88 zeigt den prozentualen Einfluss auf ξ_e , die die Umrechnung des aerodynamischen- bzw. des Stokes-Radius der Größenverteilungsmessung in den Volumenäquivalentradius mit sich bringt. Durch diese nicht lineare Radiusumformung wird die Form der Größenverteilung gestaucht und verschoben. Der Einfluss auf ξ_e ist mit maximal 3% allerdings sehr gering.

³Im Folgenden wird implizit vorausgesetzt, dass es sich bei den hier vorgestellten Werten des Modellfehlers um Medianwerte handelt.

Wie sich noch in Abschnitt 5.3 auf Seite 92 zeigen wird, hat diese Korrektur einen entscheidenden Einfluss, wenn man die optischen Eigenschaften der Partikel aus den mikrophysikalischen Messungen berechnet und nicht nur das Verhältnis zweier Extinktionskoeffizienten bei unterschiedlichen Feuchten betrachtet.

Partikel benötigen bei hoher relativer Umgebungsfeuchte sehr lange, bis sie im Gleichgewicht mit der Umgebung stehen. Aus diesem Grund ist das verwendete Gleichgewicht-Wachstumsmodell nicht mehr für Partikel bei rel. Feuchten nahe 100% repräsentativ. Als gute Näherung erwies es sich [Hänel [private Mitteilungen]] für rel. Feuchten größer 97,5% den Feuchtekorrekturfaktor ξ_e konstant zu halten ($\xi_e(f \geq 0,975) = \xi_e(f = 0,975) = \text{const.}$).

Aus dieser Sensitivitätsstudie der Modellrechnungen kann man ableiten, welche Einflussgrößen mit welcher Genauigkeit für die Berechnung eines Feuchtekorrekturfaktors der Extinktion experimentell bestimmt werden müssen, bzw. welche Einflussgrößen durch Näherung bzw. Annahmen abgeschätzt werden können. Für hohe Luftfeuchten $\geq 90\%$ muss insbesondere die Luftfeuchtigkeitsmessung sehr präzise –mit Fehlern kleiner 1%– vorgenommen werden. Schon sehr kleine Fehler wirken sich stark auf das Endergebnis aus. Der Realteil des Brechungsindex muss mit einem Fehler kleiner als 6% bestimmt werden. Der wasserlösliche Anteil f_{sm} kann hingegen durch Literaturwerte, bzw. Annahmen substituiert werden. Messungen von f_{sm} während LACE 98 zeigten eine Varianz von deutlich kleiner als 10%. Dies führt zu einem maximalen Modellfehler von 0,6% bei 60-70% rel. Luftfeuchtigkeit (vergleiche hierzu Tabelle 5.2 auf Seite 89).

5.2 Feuchtekorrektur der Telephotometerdaten

Ein wichtiges Ziel von LACE 98 war der Vergleich der Messungen des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand, die in Kapitel III vorgestellt wurden, mit den Messungen des Extinktionskoeffizienten der Partikel bei Umgebungsfeuchte, wie sie vom Telephotometer bestimmt werden. Das im vorangegangenen Abschnitt vorgestellte Modell zur Feuchtekorrektur des Extinktionskoeffizienten ermöglicht diesen Vergleich. Abbildung 5.3 zeigt nun die mit dem Telephotometer und dem Aerosolphotometer bestimmten Zeitreihen des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand. Die 30-Minuten-Mittelwerte des Extinktionskoeffizienten, gemessen mit dem Telephotometer, wurden für diesen Vergleich feuchtekoriert. Anschließend wurden aus den vorhandenen Daten Mittelwerte für die Sammelzeiträume der Filter für das Aerosolphotometer berechnet. Da das Telephotometer kein aktives Messinstrument ist, liegen keine Messungen des Telephotometers während der Nacht (zwischen 19:30 und 6:30 UTC) vor, was u. U. zu einem systematischen Unterschätzen des Extinktionskoeffizienten durch Partikel führen kann (s. hierzu weiter unten im Text).

f	$\Delta \xi_e$ [%]						
	Gesamtfehler aller Einflussgrößen	ΔB_0	Δn_0	Δk_0	Δf_{sm}	Δf	Radiuskorrektur
0,20-0,30	1,04	0,36	0,99	0,03	0,14	0,07	0,14
0,30-0,40	3,04	0,91	2,85	0,05	0,32	0,18	0,26
0,40-0,50	3,34	1,29	2,43	0,09	0,44	0,29	0,31
0,50-0,60	3,50	2,01	2,42	0,12	0,57	0,52	0,50
0,60-0,70	4,64	3,19	2,79	0,17	0,64	1,06	0,59
0,70-0,80	6,63	4,60	4,19	0,45	0,44	2,08	0,66
0,80-0,90	9,81	5,93	5,38	0,58	0,15	3,94	1,74
0,90-0,95	16,02	8,14	8,59	0,88	0,11	10,45	1,92
0,95-0,98	39,90	10,15	13,94	0,90	0,10	36,05	2,64
abgeschätzte Fehler der Einflussgrößen			10%	6%	20%	10%	1%

Tabelle 5.1: Medianwerte des Modellfehlers von $\xi_e = \frac{\sigma_e(f)}{\sigma_e(f=0)}$ auf Basis aller Modellrechnungen während LACE 98 in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f . In der ersten Spalte findet sich der prozentuale Gesamtfehler von ξ_e , der aus den in der untersten Tabellenzeile notierten Messfehlern der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der partiellen Fehler der einzelnen Einflussgrößen ist in den folgenden fünf Spalten angegeben. (B_0 Aktivierungsparameter, $n_0 - ik_0$ komplexer Brechungsindex der trockenen Partikel, f_{sm} Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz und f relative Feuchtigkeit der Umgebungsluft. In der letzten Spalte ist noch zusätzlich der relative Einfluss der Korrektur des Radius der APS/DMPS Partikelgrößenklassen bei der Größenverteilungsmessung auf ξ_e angegeben.

Impaktorstufe	r_{50} [μm]	f_{sm} [%]	$\sigma(f_{sm})$
1	0,195	87,9	1,6
4	0,648	52,7	2,6
5	0,922	59,7	2,4
6	1,31	57,3	5,9
7	1,869	70,7	2,6

Tabelle 5.2: Mittelwerte des wasserlöslichen Volumenanteils der Partikel f_{sm} , bestimmt mit Hilfe der SofA Methode während LACE 98. Die Messwerte liegen bezüglich verschiedener Impaktorstufen vor. Die 50% Abscheideeffizienzradien der einzelnen Impaktorstufen sind in der zweiten Spalte notiert. In der letzten Spalte sind die Varianzen $\sigma(f_{sm})$ von f_{sm} für die Messkampagne LACE 98 notiert.

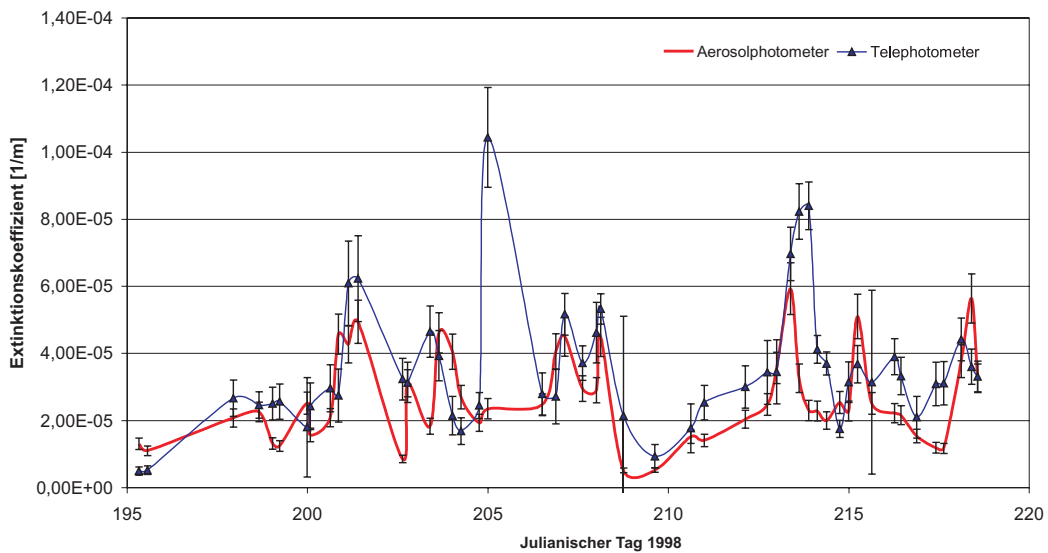


Abbildung 5.3: Vergleich der Zeitreihen der auf den Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel im trockenen Zustand feuchtekorrigen Extinktionskoeffizienten des Telephotometers mit den direkt gemessenen Extinktionskoeffizienten trockener Partikel des Aerosolphotometers während LACE 98.

Beide Zeitreihen stimmen innerhalb der Fehlergrenzen gut miteinander überein. Allerdings übertrifft der Extinktionskoeffizient des Telephotometers die Daten des Aerosolphotometers während zweier Perioden (Julianische Tage 205 und 213) um einem Faktor von maximal 4-5. Während dieser Perioden wurden in unmittelbarer Nähe des Messfeldes in Blickrichtung des Telephotometers Getreidefelder abgeerntet. Die hierbei entstandenen sehr großen Partikel zogen als sichtbare dichte Wolke durch das Gesichtsfeld des Telephotometers und wurden von ihm erfasst. Sie zogen jedoch nicht direkt über das Messfeld und wurden somit nicht auf den Filtern des Aerosolphotometers abgeschieden. Nephelometer- bzw. PSAP-Messungen des Streu- bzw. Absorptionskoeffizienten bestätigen dies. Am Tag 205 führte zudem durchbrochene Bewölkung zu erhöhten Messfehlern beim Telephotometer (vgl. hierzu Theoretische Grundlagen des Telephotometers (2.3.1 auf Seite 44)), so dass die Messungen um 13:00 Uhr UTC abgebrochen werden mussten.

Im Mittel zeigt die Zeitreihe, berechnet aus den Telephotometer- Extinktionskoeffizienten, ca. 20% höhere Werte des Extinktionskoeffizienten als die Messungen des Aerosolphotometers. Die Regression beider Zeitreihen liefert ein Bestimmtheitsmaß R^2 von 0,45. Als Ursache für die schlechte Korrelation könnte man zunächst annehmen, dass Nachtwerte für die Mittelwertbildung vom Telephotometer nicht vorlagen. Während der Nachtstunden erwartet man allerdings durch die zunehmende Stabilisierung der Grenzschicht und das „Einschlafen“ der konvektiven Durchmischung in der bodennahen Luftschichten höhere Partikelkonzentrationen als am Tag, da Partikel nahe ihren Quellen am Boden verbleiben und nicht in höhere Luftschichten gelangen. Mit Ausbildung einer neuen Grenzschicht kurz nach Sonnenaufgang und ihrer vertikalen Ausdehnung während des Tages werden fallende Partikelkonzentrationen und damit verbunden auch niedrigere Werte der Schwächungskoeffizienten der Partikel erwartet. Die Messungen der hochaufgelösten Nephelometer- und PSAP- Zeitreihen bestätigen dieses Verhalten für den Streu- und Absorptionskoeffizienten. Da aber gerade die Nachtwerte systematisch im Datensatz des Telephotometers fehlen, müssten diese Mittelwerte des Extinktionskoeffizienten demzufolge durch die Mittelwertbildung über die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer eher zu kleineren Werten hin tendieren. Dass die fehlenden Nachtwerte nicht als Verursacher des systematischen Unterschieds in Betracht kommen, ist auch aus einem Vergleich der mit beiden Verfahren unmittelbar parallel gemessenen Extinktionskoeffizienten, berechnet aus der Summe des Streu- und Absorptionskoeffizienten des Nephelometers bzw. des PSAP zu sehen.

Im Mittel sind die aus den Nephelometer/PSAP-Daten berechneten Extinktionskoeffizienten um 34% kleiner als die feuchtekorrigierten Messwerte des Telephotometers bzgl. trockener Partikel. Beim Vergleich der Streukoeffizienten (Nephelometer – Aerosolphotometer) wurde im Rahmen der direkten Schließung

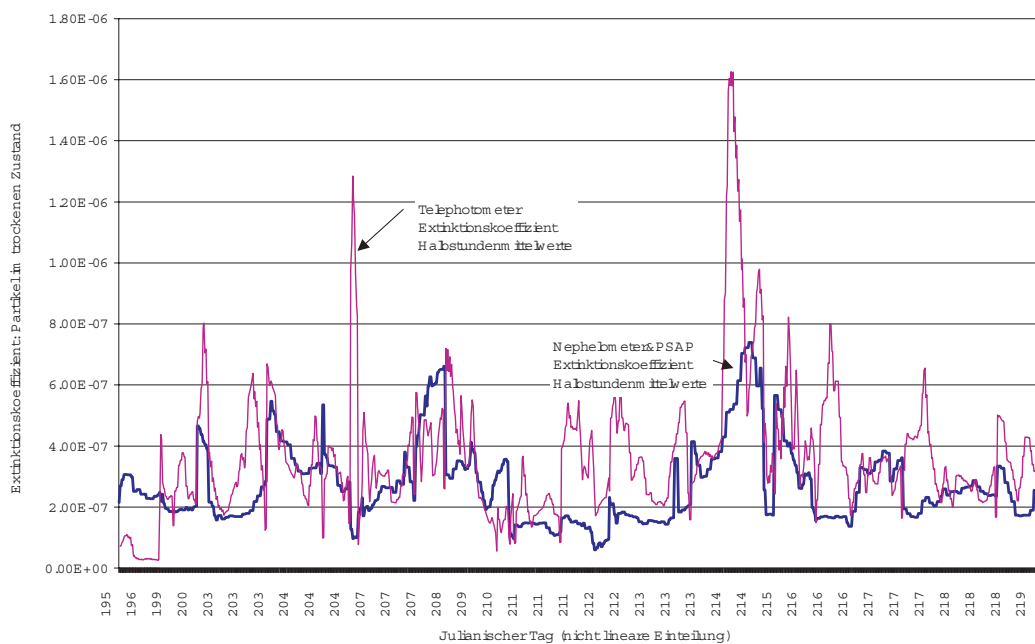


Abbildung 5.4: Abgebildet sind Halbstundenmittelwerte des feuchtekorrigierten Extinktionskoeffizienten des Telephotometers und die entsprechenden Werte des Extinktionskoeffizienten, berechnet aus der Summe des Streu- und Absorptionskoeffizienten, gemessen mit dem Nephelometer bzw. PSAP. Die Abszisse ist keine echte Zeitskala, da nur von beiden Verfahren parallel vorliegende Einzelmessungen unmittelbar hintereinander entlang der Abszisse aufgetragen wurden. Statt der sonst üblichen Ordnungszahlen der Einzelmessungen wurden zur besseren Orientierung hier Zeitmarken (Julianischer Tag 1998) auf der Abszisse verwendet.

schon gezeigt, dass Partikel mit Durchmessern größer $4\mu\text{m}$ nicht in das Nephelometer gelangen und so bei der Bestimmung des Streukoeffizienten unberücksichtigt bleiben. Dies dürfte auch der Grund dafür sein, warum einige Spitzenwerte nicht vom Nephelometer registriert werden. Mit einem sehr schlechten Bestimmtheitsmaß der Korrelation zwischen den betrachteten Messreihen von $R^2 = 0,18$ wird dies ebenfalls im Verhältnis zu der besseren Korrelation ($R^2 = 0,45$) zwischen den Telephotometer- und den Aerosolphotometer- Extinktionskoeffizienten verdeutlicht.

Für zukünftige Experimente bedeutet dieses Ergebnis, dass Partikel mit Durchmessern größer als $4\mu\text{m}$ nicht zu vernachlässigen sind, da sie quantitativ relevant für den Wert des Extinktionskoeffizienten der Partikel und somit auch klimarelevant sind. Insbesondere ist darauf zu achten, dass Messungen möglichst ohne Verluste großer Partikel vorgenommen werden. Bei Filterproben, wie beispielsweise denen für das Aerosolphotometer, ist dies leicht durch eine freie horizontale Exposition des Filters mit minimaler Beeinträchtigung durch den notwendigen Regenschutz zu realisieren. Bei Systemen wie dem Nephelometer müssen zuführende Probenahmeleitungen möglichst kurz, mit großen Durchmessern, ohne starke Biegungen und mit möglichst wenigen horizontal verlaufenden Strecken realisiert werden, um Partikelverluste zu minimieren. Zudem ist eine Charakterisierung der Partikelverluste in den Probenahmesystemen mit Testaerosolpartikeln durchzuführen, um den dadurch bedingten Messfehler des Gerätes abschätzen zu können.

5.3 Optische Eigenschaften der Partikel berechnet mit dem Kugelschalenmodell

Bei der Berechnung des Feuchtekorrekturfaktors des Extinktionskoeffizienten ξ_e wird explizit der Extinktionskoeffizient im feuchten und im trockenen Zustand der Partikel berechnet (vgl. Gleichung 5.1). In diesem Abschnitt sollen neben diesem direkt aus den mikrophysikalischen Messungen bestimmbar Extinktionskoeffizienten der Partikel auch der Absorptions-, Streu- und Rückstreukoeffizient der Partikel im trockenen Zustand mit den direkten Messungen verglichen werden. Dies ist relativ einfach mit dem schon vorgestellten Modell zu realisieren, da mit dem verwendeten Algorithmus von *Bohren & Huffman* [1983] neben dem bisher verwendeten Wirkungsfaktor der Extinktion κ_e auch die Wirkungsfaktoren der Streuung κ_s , der Absorption κ_a und der Rückstreuung κ_b berechnet werden. Analog zu Gleichung 5.1 gilt für den Absorptions-, Streu- und Rückstreukoeffizienten

5.3 Optische Eigenschaften der Partikel berechnet mit dem Kugelschalenmodell

der Partikel:

$$\sigma_{sM\lambda} = \frac{1}{\Delta V} \sum_{j=1}^{\Delta N} \kappa_{s\lambda j} \pi r_j^2 \quad (5.15)$$

$$\sigma_{aM\lambda} = \frac{1}{\Delta V} \sum_{j=1}^{\Delta N} \kappa_{a\lambda j} \pi r_j^2 \quad (5.16)$$

$$\sigma_{bM\lambda} = \frac{1}{\Delta V} \sum_{j=1}^{\Delta N} \kappa_{b\lambda j} \pi r_j^2 \quad (5.17)$$

ΔV =betrachtetes Luftvolumen

ΔN =Anzahl der Partikel im Volumen ΔV

$\kappa_{(s;a;b)\lambda j}$ =Wirkungsfaktor der Streuung, der Absorption bzw. der Rückstreuung des j'ten Partikels mit dem Volumenäquivalentradius r_j bei der Wellenlänge λ

Zur besseren Unterscheidung der mit dem Modell berechneten von den gemessenen Schwächungskoeffizienten wird hier der zusätzliche Index „M“ verwendet. Die Summenbildung über die Größenverteilung zur Berechnung des Absorptions-, Streu- und Rückstreukoeffizienten kann zeitsparend parallel zur Berechnung des Extinktionskoeffizienten innerhalb des Modells erfolgen, da lediglich verschiedene κ -Werte in den sonst identischen Summanden (Gleichung 5.15) eingesetzt werden müssen.

Extinktions-, Streu-, Rückstreu- und Absorptionskoeffizient, sowie die Single Scattering Albedo der Partikel stehen also ebenfalls berechnet aus den mikrophysikalischen Messungen der Partikeleigenschaften als Zeitreihen während LACE 98 für die Schließung der optischen Eigenschaften der Partikel sowohl im trockenen Zustand als auch im feuchten Zustand zur Verfügung.

5.3.1 Sensitivitätsstudie und Fehleranalyse

Analog zu der Sensitivitätsstudie bei dem Modell des Feuchtekorrekturfaktors des Extinktionskoeffizienten ξ_e werden in diesem Abschnitt die Medianwerte des prozentualen Modellfehlers, der aus den mikrophysikalischen Messungen berechneten Schwächungskoeffizienten σ_{xM} mit $x \in \{e, s, a, b\}$ für die Messkampagne LACE 98, vorgestellt. Als Funktion der relativen Luftfeuchte sind sie für den

Extinktionskoeffizienten in Tabelle 5.3 auf Seite 95 zusammengefasst. Analoge Tabellen zum Absorptions-, Streu- und Rückstreuoeffizienten sind im Anhang C auf Seite 209 einzusehen. Wie bei der Sensitivitätsstudie des Modells zur Berechnung von ξ_e gilt auch hier, dass die Höhe der Modellfehler stark von den aktuellen mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel abhängig ist. Aus diesem Grund wird die Sensitivitätsanalyse des Modells wieder auf Basis von Einzelmodellrechnungen mit aktuellen Werten der mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel für die Messkampagne LACE 98 und nicht durch einfache Variation der rel. Feuchte für einen Aerosoltyp mit konstanten mikrophysikalischen Eigenschaften durchgeführt. Aus diesem Datensatz werden anschließend wiederum Medianwerte als Funktion der Feuchte bestimmt.

Der Gesamtfehler⁴ der Modellrechnungen (siehe Tabelle 5.3 und Tabelle C.2 auf Seite 211 im Anhang) von Extinktions- und Streukoeffizienten ist praktisch unabhängig von der rel. Feuchte und zeigt erst bei relativen Luftfeuchten größer 90-95% den schon bei den Modellrechnungen von ξ_e bekannten exponentiellen Anstieg der Fehler mit der rel. Feuchte. Dieser Anstieg wird vor allem durch die Messfehler bei der Bestimmung des Aktivierungsparameters B_0 und der rel. Feuchte f verursacht. Bei niedrigen Feuchten wird der Gesamtfehler dominiert durch den Messfehler des Realteils des Brechungsindex n_0 der trockenen Partikel ($\Delta n_0 \approx 23\%$, $f = 0$). Mit ansteigender Feuchte verliert dieser partielle Fehler aber zunehmend an Einfluss, da der Brechungsindex des Mischteilchens zunehmend durch den hohen Wasseranteil bestimmt wird ($\Delta n_0 \approx 2\%$ bei $f=0,975$). Praktisch unabhängig von der rel. Feuchte ist mit 22-26% der partielle Fehler $\Delta \kappa_0$, der durch die Unsicherheit bei der Annahme des aerodynamischen Formfaktors im Rahmen der Radiuskorrektur der Größenverteilung im Modell hervorgerufen wird. Ein systematischer Fehler, der sich bei allen Größenklassen gleich stark bei der Größenverteilungsmessung auswirkt, spiegelt sich in gleicher Höhe als partieller Fehler $\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$ im Modell wieder (hier 10%). Die partiellen Fehler des Imaginärteils des Brechungsindex Δk_0 , der Dichte $\Delta \rho_0$ und des Volumenanteils der wasserlöslichen Substanz Δf_{sm} trockener Partikel sind stets kleiner als 5%. Keinen Einfluss (Fehler kleiner 0,1%) zeigt selbst ein extrem hoher Fehleransatz der Temperaturmessung von 5%, was einer Temperaturspanne von ca. 15K entspricht. Die Fehlerspanne der Temperaturmessung wurde so hoch angesetzt, um zu zeigen, dass die Temperatur durch Annahmen in den Modellrechnungen parametrisiert werden kann.

Der Gesamtfehler des Modells für den Absorptionskoeffizienten (vgl. Tabelle C.3 auf Seite 212) zeigt ein ähnliches Verhalten, wie es schon beim Streu- und Extinktionskoeffizienten berichtet wurde. Er steigt von 35 auf 43 % mit zuneh-

⁴Im Folgenden wird nicht mehr gesondert erwähnt, dass es sich bei den vorgestellten Werten der Fehler um Medianwerte handelt.

5.3 Optische Eigenschaften der Partikel berechnet mit dem Kugelschalenmode

f	$\Delta\sigma_{em} [\%]$											Anzahl
	Gesamtfehler	ΔB_0	ΔT	Δn_0	Δk_0	Δf_{sm}	Δf	$\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$	$\Delta \kappa_0$	$\Delta \rho_0$	Δ Radiuskorrektur	
0	35,0	0,0	0,0	23,1	0,4	0,0	0,0	10,0	24,0	4,0	75,0	3236
0,1 - 0,2	33,2	0,4	0,0	21,8	0,8	4,1	0,1	10,0	22,6	4,1	71,3	41
0,2 - 0,3	30,7	0,8	0,0	19,2	0,6	1,3	0,2	10,0	21,7	4,7	66,7	157
0,3 - 0,4	34,2	1,3	0,0	21,6	0,5	2,0	0,3	10,0	24,5	3,9	76,0	414
0,4 - 0,5	32,3	2,2	0,0	19,2	0,4	1,5	0,6	10,0	23,8	4,2	75,0	502
0,5 - 0,6	32,3	3,1	0,0	18,4	0,4	1,5	1,0	10,0	24,3	3,6	75,9	483
0,6 - 0,7	30,7	4,5	0,0	14,7	0,2	1,5	2,0	10,0	24,4	3,8	75,2	445
0,7 - 0,8	29,8	6,3	0,0	11,1	0,2	1,2	4,8	10,0	24,5	3,5	75,5	535
0,8 - 0,9	32,4	8,6	0,1	7,0	0,1	0,9	13,1	10,0	25,6	2,7	78,4	381
0,9 - 0,95	43,8	9,8	0,1	2,5	0,0	0,3	32,3	10,0	25,9	1,8	76,8	278
Fehler der Einganggröße	10%	5%	6%	10%	10%	1%	10%	10%	10%	10%		

Table 5.3: Medianwerte des prozentualen Modellfehlers des Extinktionskoeffizienten der Partikel in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f . In der ersten Spalte steht der prozentuale Gesamtfehler, der aus den in der untersten Zeile notierten Messfehlern der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der Fehler der einzelnen Einflussgrößen (partielle Fehler) ist in den folgenden acht Spalten angegeben. Hierbei handelt es sich um folgende partiellen Fehler: ΔB_0 des Aktivierungsparameters, Δn_0 und Δk_0 des komplexen Brechungsindexes der trockenen Partikel, Δf_{sm} des Volumenanteils der wasserlöslichen Substanz, Δf der rel. Feuchtigkeit, $\Delta \kappa_0$ des aerodynamischen Formfaktors, $\Delta \rho_0$ der Dichte und $\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$ der Größenverteilung [Anzahlkonzentration] bei einem größenunabhängigen systematischen Fehler der Messung. In der letzten Spalte ist zusätzlich der relative Einfluss der Radiuskorrektur der APS/DMPS Größenverteilungsmessung angegeben, die aus der Differenz der Modellwerte mit und ohne Radiuskorrektur berechnet wurde. Dieser Wert geht nicht in den Gesamtfehler ein!

mender Feuchte leicht an. Im Gegensatz zu den Modellrechnungen beim Streu- und Extinktionskoeffizienten wird dieser Anstieg nicht durch Δf bzw. ΔB_0 verursacht (diese partiellen Fehler sind bei rel. Feuchten über 95% kleiner als 1%). Vielmehr dominiert mit zunehmender Feuchte Δn_0 den Gesamtfehler. Mit 6% ist der partielle Fehler Δk_0 des Realteils des Brechungsindex der trocknen Partikel praktisch konstant für alle Feuchten.

Beim Gesamtfehler des Rückstreukoeffizienten (vgl. C.4 auf Seite 213) zeigt sich das Maximum des Modellfehlers von ca. 70% im Bereich der rel. Feuchte von 40 bis 60%. In diesem Feuchtebereich zeigen alle betrachteten partiellen Fehler bis auf Δf , $\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$ und ΔT ihren maximalen Wert. Letztere zeigen mit 10% Fehler ($\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$) bzw. Fehlern kleiner 0,1% (ΔT) keine Feuchteabhängigkeit. Δf besitzt in diesem Feuchtebereich nur ein relatives Maximum von 20% und erreicht erst bei rel. Feuchten größer 95% sein absolutes Maximum mit einem Fehler von ca. 30%.

Insgesamt gesehen führt hier die fehlende Verhältnisbildung der Schwächungskoeffizienten im Vergleich zu den Modellfehlern bei der Berechnung des Feuchtekorrekturfaktors ξ_e , insbesondere bei Feuchten unter 95%, zu wesentlich höheren Modellfehlern. War die Radiuskorrektur (Aerodynamischer-/Stokes-Radius \Leftrightarrow Volumenäquivalentradius) bei der Berechnung von ξ_e mit maximal 3% praktisch zu vernachlässigen, so erweist sich diese Korrektur als zwingend notwendig bei der Berechnung der Schwächungskoeffizienten. Die Radiuskorrektur führt hier zu um bis zu 94% höheren Werten der Schwächungskoeffizienten ($\Delta \sigma_e \sim 75\%$, $\Delta \sigma_s \sim 80\%$, $\Delta \sigma_a \sim 60\%$, $\Delta \sigma_b \sim 94\%$). Als besonders kritisch zeigt sich hierbei die Wahl des aerodynamischen Formfaktors κ_0 . Ein Fehler von 10% bei der Wahl von κ_0 führt so zu einem mittleren Modellfehler von 25% beim Extinktions- und Streukoeffizienten, wohingegen eine Variation von ρ_0 um 10% die Modellergebnisse des Extinktionskoeffizienten z.B. um maximal 5% verändert. Beim Absorptions- und insbesondere beim Rückstreukoeffizienten wirkt sich eine Variation von ρ_0 wesentlich stärker aus. Insbesondere wird der Gesamtmodellfehler bei der Berechnung des Rückstreukoeffizienten der Partikel durch den partiellen Fehler $\Delta \rho_0$ mit Medianwerten des Fehlers bis zu 50% bei geringen rel. Feuchten dominiert.

5.3.2 Schließungsergebnisse

Vergleich der Modellrechnungen mit dem Extinktionskoeffizienten des Aerosolphotometers

In diesem Abschnitt werden die Modellergebnisse des oben beschriebenen und mit der Sensitivitätsstudie charakterisierten Modells zur Berechnung des Extinktions-, des Streu-, des Absorptions-, sowie des Rückstreukoeffizienten als

5.3 Optische Eigenschaften der Partikel berechnet mit dem Kugelschalenmodell 97

Funktion der mikrophysikalischen Partikeleigenschaften mit direkten Messungen der einzelnen Koeffizienten verglichen. In den Abbildungen 5.5 bis 5.8 auf Seiten 97–99 sind hierzu die gemessenen Zeitreihen der Schwächungskoeffizienten und der Single Scattering Albedo im direkten Vergleich mit den Modellrechnungen abgebildet. Im statistischen Mittel zeigt sich, dass der Extinktionskoeffizient gemessen mit dem Aerosolphotometer um 67% höhere Werte besitzt als die Modellergebnisse. Gleiches gilt für den Streukoeffizienten mit 77%, für den Absorptionskoeffizienten mit 20% und für die Single Scattering Albedo mit ca. 6% höheren Werten. Das Bestimmtheitsmaß der Korrelation zwischen den beiden Zeitreihen des Extinktionskoeffizienten ist mit $R^2 \approx 0,25$ sehr schlecht.

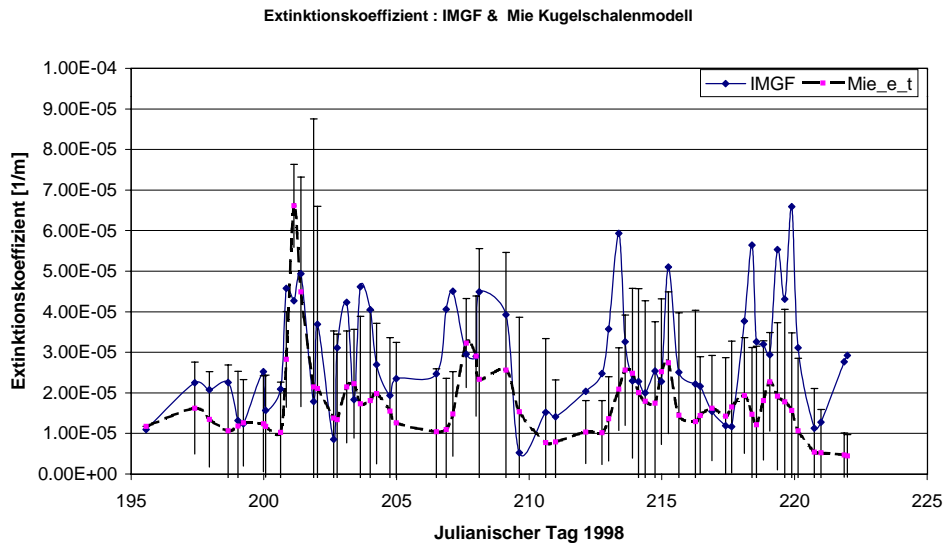


Abbildung 5.5: Abgebildet sind die Zeitreihen des Extinktionskoeffizienten bestimmt mit Hilfe des Aerosolphotometers und berechnet mit Hilfe des Kugelschalenmodells. Aus den Modellwerten wurden Mittelwerte für die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer berechnet, um einen direkten Vergleich mit den mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Werten zu ermöglichen.

Vergleich der Modellrechnungen mit dem Streu- und Rückstreukoeffizienten des Nephelometers

Die Frage, die sich nun stellt, ist, ob die beobachteten Differenzen zwischen den Modellwerten und den mit dem Aerosolphotometer bestimmten Werten von $\sigma_e, \sigma_s, \sigma_a, \omega$ durch Modellfehler erklärt werden können oder die unterschiedlichen Sammelsysteme bei der Probenahme für das Aerosolphotometer und bei der Größenverteilungsmessung (als wichtigster Modellvariable) für den systematischen Unterschied und die schlechte Korrelation verantwortlich gemacht wer-

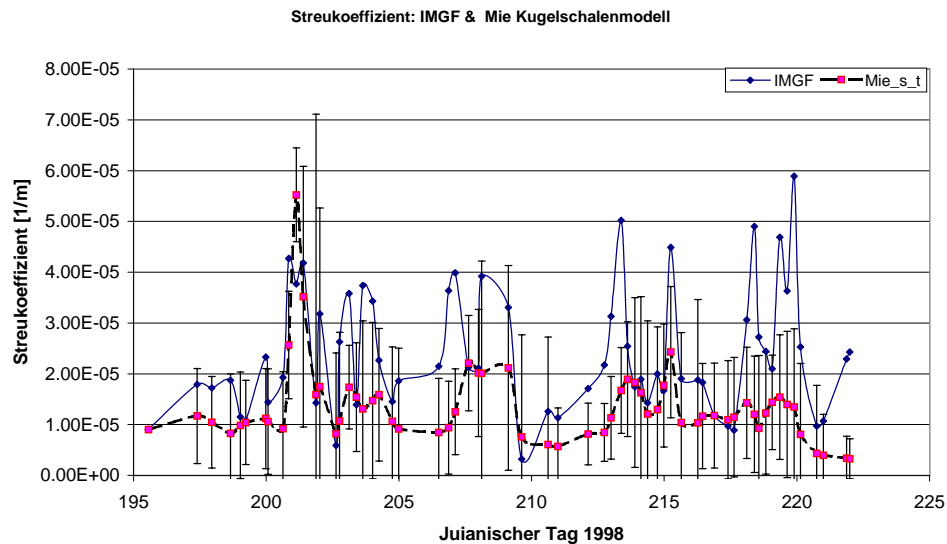


Abbildung 5.6: Abgebildet sind die Zeitreihen des Streukoeffizienten bestimmt mit Hilfe des Aerosolphotometers und berechnet mit Hilfe des Kugelschalenmodells. Aus den Modellwerten wurden Mittelwerte für die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer berechnet, um einen direkten Vergleich mit den mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Werten zu ermöglichen.

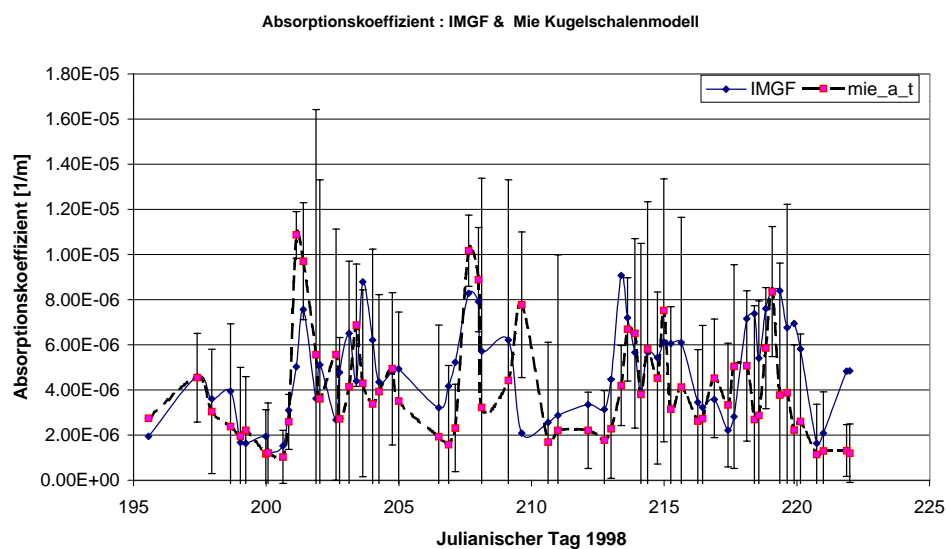


Abbildung 5.7: Abgebildet sind die Zeitreihen des Absorptionskoeffizienten bestimmt mit Hilfe des Aerosolphotometers und berechnet mit Hilfe des Kugelschalenmodells. Aus den Modellwerten wurden Mittelwerte für die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer berechnet, um einen direkten Vergleich mit den mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Werten zu ermöglichen.

5.3 Optische Eigenschaften der Partikel berechnet mit dem Kugelschalenmodell⁹⁹

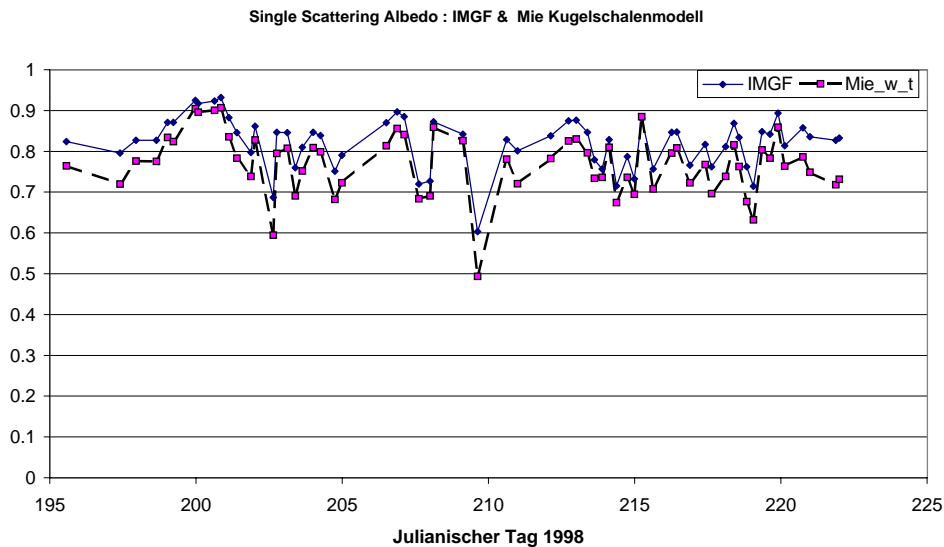


Abbildung 5.8: Abgebildet sind die Zeitreihen der Single Scattering Albedo bestimmt mit Hilfe des Aerosolphotometers und berechnet mit Hilfe des Kugelschalenmodells. Aus den Modellwerten wurden Mittelwerte für die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer berechnet, um einen direkten Vergleich mit den mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Werten zu ermöglichen.

den können. Der letzte Fall bedeutet, dass man unterschiedlich zusammengesetzte Partikelkollektive mit entsprechend unterschiedlichen optischen Eigenschaften betrachtet und der beobachtete Unterschied zwingend ist. Um diese Frage zu beantworten, werden im Folgenden Nephelometermessungen des Streu- und Rückstreuoeffizienten mit den entsprechenden Modellrechnungen verglichen. Das Nephelometer und die Messgeräte für die Größenverteilung (APS/DMPS) benutzen ein gemeinsames Partikel-Einlasssystem bei der Probenahme. Ein Vergleich der Nephelometermessungen des Streukoeffizienten mit den zugehörigen Modellergebnissen sollte also Modellfehler bzw. Fehler durch falsche Parameterwahl erfolgreich aufdecken können. In Abbildung 5.9 auf der nächsten Seite sind Nephelometermessungen und Modellrechnungen des Streukoeffizienten als 30-Minuten-Mittelwerte in einem Streudiagramm abgebildet⁵. Der sehr hohe Wert des Bestimmtheitsmaßes von $R^2 = 0,86$ allerdings und einer Steigung der Regressionsgeraden von 1,53 statt von 1 zeigt, dass der systematische Unterschied, der schon beim oben vorgestellten Vergleich der Modellergebnisse mit den Daten des Aerosolphotometers festgestellt wurde, durch Modellfehler bzw. falsche Annahmen verursacht ist. Die schlechte Korrelation mit den Aerosolphotometerdaten

⁵Es wurden bei diesem Streudiagramm Werte vom Tag 201 nicht berücksichtigt. Diese Werte stellten sich als Ausreißer in Form einer separaten Punktwolke im Streudiagramm dar. Die hier vorgenommene Regressionsanalyse soll hingegen den Regelfall beschreiben.

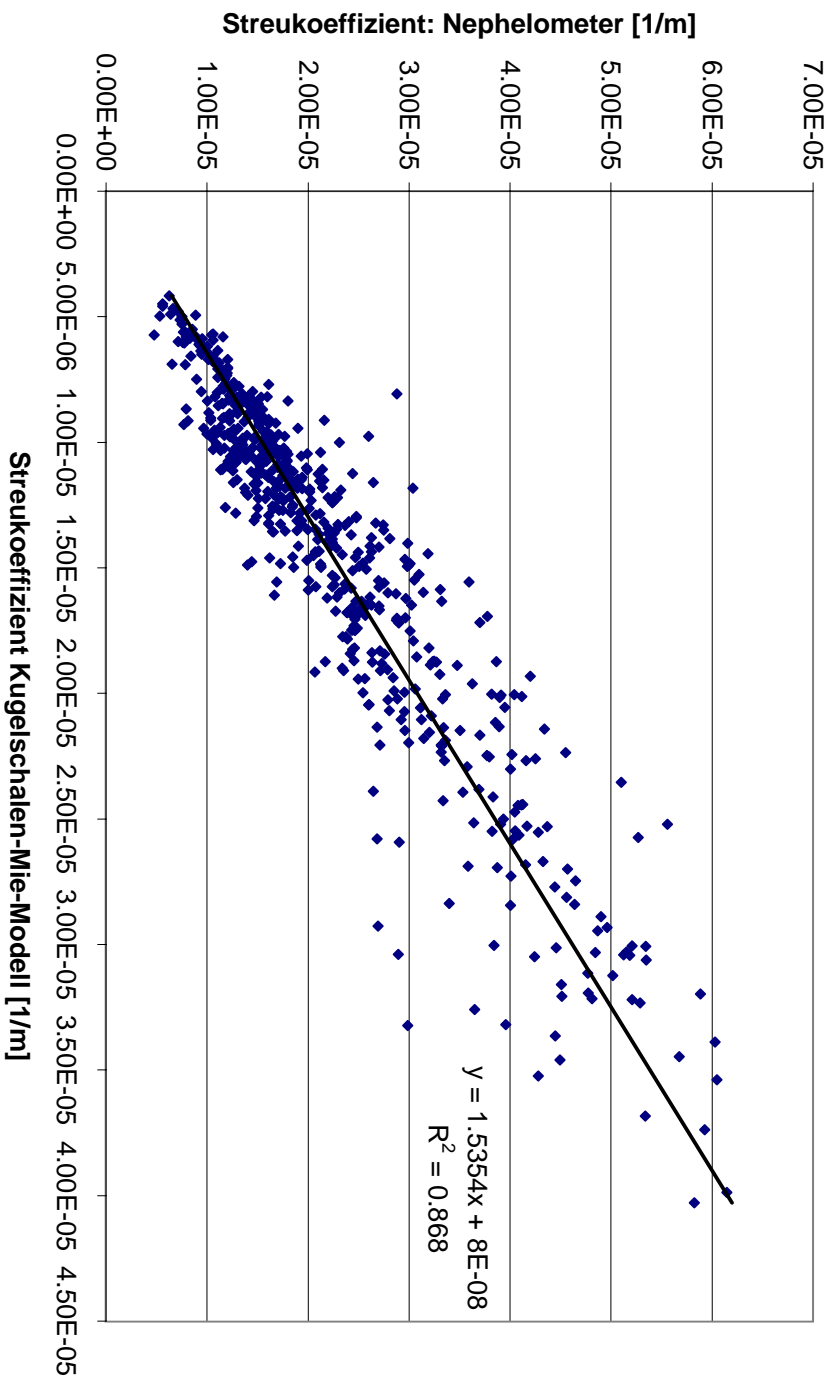


Abbildung 5.9: Streudiagramm: Aufgetragen ist der Streukoeffizient atmosphärischer Partikel, berechnet aus den mikrophysikalischen Messungen der Partikel gegenüber den direkten Messungen des Nephelometers auf Halbstundenwertbasis. Es zeigt sich eine gute Korrelation der beiden Zeitreihen mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2=0,86$. Die Steigung der Regressionsgeraden beträgt 1,53. Das starke Abweichen der Steigung von der 1:1-Korrelation weist auf Modellfehler bzw. falsche Annahmen im Modell hin.

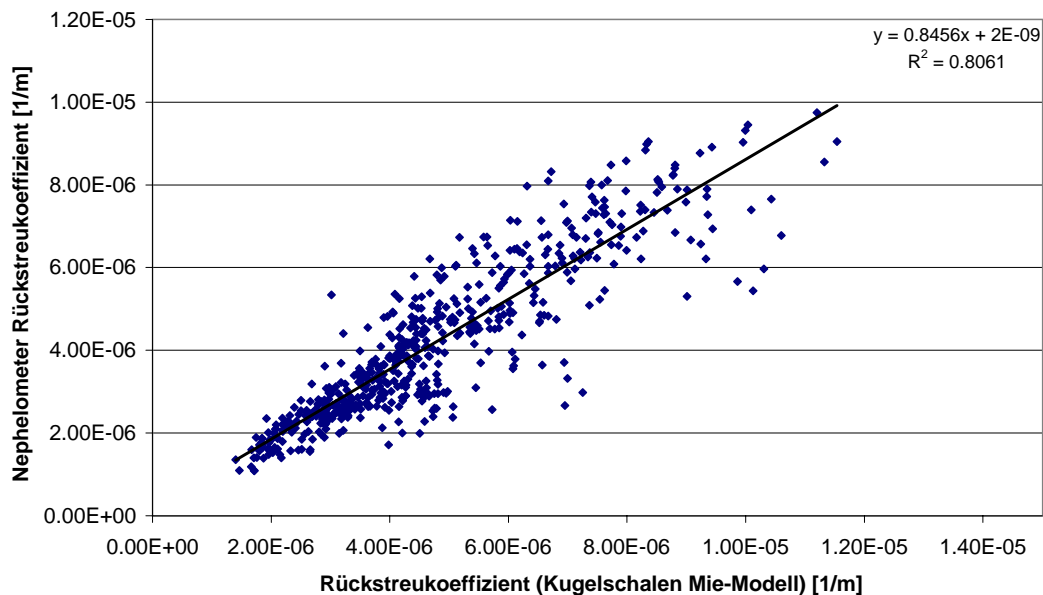
5.3 Optische Eigenschaften der Partikel berechnet mit dem Kugelschalenmodell 11

(Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,25$) ist hingegen auf Unterschiede im Sammelsystem zurückzuführen. Bestätigt wird diese Aussage ferner durch einen Vergleich des berechneten Rückstreukoeffizienten mit den zugehörigen Nephelometermessungen.

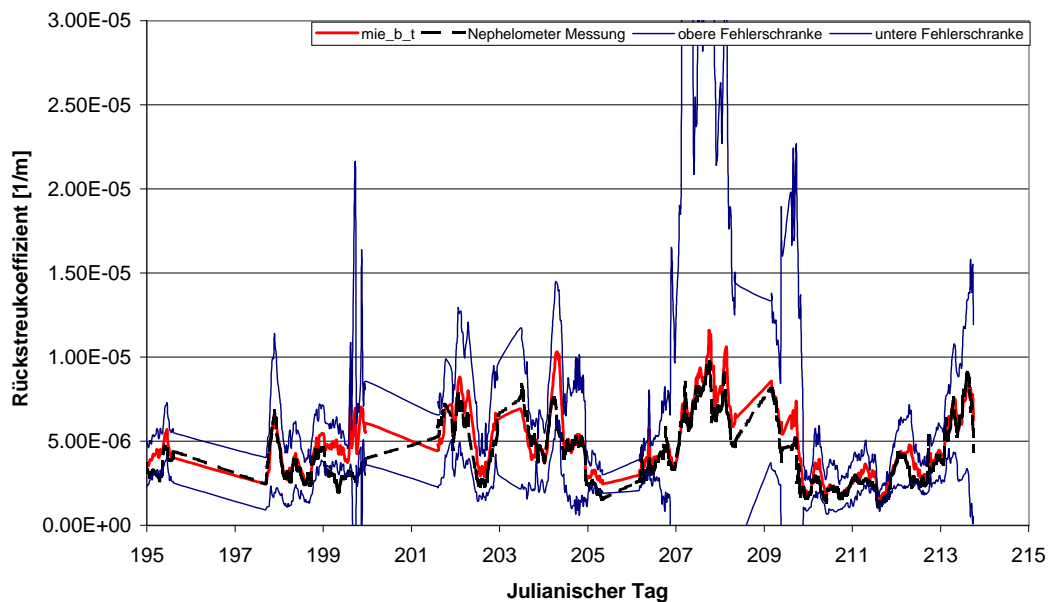
Abbildung 5.10 zeigt den mit Hilfe des Kugelschalenmodells berechneten Rückstreukoeffizienten im Streudiagramm zusammen mit dem durch das Nephelometer bestimmten Rückstreukoeffizienten. Das Nephelometer bestimmt den Rückstreukoeffizienten konstruktionsbedingt für den Streuwinkelbereich $90^\circ \leq \psi \leq 170^\circ$ (vgl. Abschnitt 2.2.2 auf Seite 38). Untersuchungen von *Anderson et al.* [1996] (vgl. Abbildung 2.3 auf Seite 40) zeigen, dass der dadurch bedingte Fehler der Nephelometermessungen gegenüber Modellrechnungen mit Hilfe der klassischen Mie-Theorie für den vollen Streuwinkelbereich von $90^\circ \leq \psi \leq 180^\circ$ für Partikelkollektive mit volumengewichteten mittleren Größenparametern α_P von 0,04 bis 15 stets kleiner 7% ist. Während LACE 98 lag der Größenparameter α_P stets im Bereich zwischen $\alpha_P = 0,31 \dots 1,21$.

Die Berechnung des Rückstreukoeffizienten im trockenen Zustand erwies sich als besonders empfindlich gegenüber Fehlern beim Ansatz der Dichte der Partikel im Rahmen der Radiuskorrektur (vgl. Abschnitt 5.3.1). Der Vergleich des berechneten Rückstreukoeffizienten mit den direkten Messwerten des Nephelometers (vgl. Abbildung 5.10) lässt nun mit dem hohen Bestimmtheitsmaß $R^2=0,8$ und der Steigung der Regressionsgeraden von 0,85 vermuten, dass der Fehler durch die Wahl der Dichte der Partikel mit $\rho_0 = 1,93$ nach *Hänel & Lehmann* [1981]; *Hänel & Thudium* [1977] kleiner als $\approx 2\%$ ist. Diese Übereinstimmung kann allerdings auch reiner Zufall sein.

Im Modell wurden neben der schon betrachteten Dichte ρ_0 auch Literaturangaben des aerodynamischen Formfaktors κ_0 für die Radiuskorrektur verwendet. Wie schon im Rahmen der Fehleranalyse dargestellt, kann allein ein Fehler von 10% bei der Wahl von κ_0 den beobachteten Faktor zwischen den Nephelometermessungen und den Modellrechnungen mit dem Kugelschalenmodell von 0,85 erklären. Die gute Korrelation der beiden Datensätze in Abbildung 5.9 und 5.10 zeigt allerdings, dass die wahren Fehler des Modells vermutlich deutlich geringer sind, als die Fehler nach der Gausschen Fehlerfortpflanzung, die den ungünstigsten Fall und somit eine obere Fehlerschranke angeben. Als wichtiges Ziel der weiteren Forschung muss die Bestimmung des aerodynamischen Formfaktors und der Dichte der Partikel im trockenen Zustand sein. Ebenfalls sollte man auf die Genauigkeit bei der Bestimmung der rel. Feuchte (insbesondere bei rel. Feuchten größer 90%) achten und gegebenenfalls bessere Messinstrumente einsetzen, wenn man die Modellfehler bei der Bestimmung der Schwächungskoeffizienten aus mikrophysikalischen Messungen deutlich senken möchte.



(a) Streudiagramm: Aufgetragen ist der Rückstreuungskoeffizient berechnet aus den mikrophysikalischen Messungen der Partikel gegenüber den direkten Messungen des Nephelometers auf Halbstundenwertbasis. Es zeigt sich eine gute Korrelation der beiden Zeitreihen mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2=0,80$. Die Steigung der Regressionsgeraden beträgt 0,84



(b) Aufgetragen ist der Rückstreuungskoeffizient berechnet aus den mikrophysikalischen Messungen der Partikel mit der zugehörigen oberen und unteren Fehlerschranke im Vergleich zu den direkten Messungen des Nephelometers auf Halbstundenwertbasis.

Abbildung 5.10: Vergleich des berechneten Rückstreuungskoeffizienten atmosphärischer Partikel (Kugelschalenmodell) mit Nephelometermessungen

5.4 Zusammenfassung

- Ein mikrophysikalisches Modell zur Berechnung der Feuchteabhängigkeit des Extinktionskoeffizienten wurde auf Basis von bekannten Modellansätzen neu erstellt. Aerosolpartikel bestehen in diesem Modell aus einem wasserunlöslichen Kern, der mit einer wässrigen Lösungshülle umgeben ist (Kugelschalenmodell). Dieser Modellansatz stellt eine Verbesserung des normalerweise verwendeten Modellansatzes eines homogenen, sphärischen Partikels dar, dessen optische Eigenschaften mit Hilfe der klassischen Mie-Theorie berechnet werden. Mit Hilfe dieses Modells kann man Messungen des Extinktionskoeffizienten des Telephotometers von Partikeln bei Umgebungsfeuchte mit Messungen des Extinktionskoeffizienten von Partikeln im trockenen Zustand schließen. Die Messkampagne LACE 98 bietet mit ihrer Vielzahl an mikrophysikalischen Messungen, die die Eigenschaften der Aerosolpartikel charakterisieren die Gelegenheit in diesem Modell auf Annahmen weitestmöglich zu verzichten. So gehen lediglich der aerodynamische Formfaktor und die Dichte der trockenen Partikel mit Annahmen in die Modellrechnung ein.
- Anhand einer Sensitivitätsstudie wurde der Modellfehler in Abhängigkeit von der rel. Feuchte mit Hilfe der Medianwerte der Fehler aller Einzelrechnungen für die Messkampagne LACE 98 charakterisiert. Neben dem Gesamtfehler des Modells wurden auch die partiellen Fehler der einzelnen Einflussgrößen beschrieben. Der Median des Gesamtfehlers ist mit ca. 40 % bei rel. Feuchten über 95% maximal und nimmt exponentiell zu geringeren Feuchten hin ab. So ist er für rel. Feuchten unter 90% kleiner 10%. Als ein wichtiges Ergebnis zeigt diese Sensitivitätsstudie, dass man die rel. Feuchte, insbesondere wenn sie Werte größer 90% annimmt, sehr präzise (Fehler deutlich kleiner 1%) bestimmen muss, um den resultierenden, recht großen Modellfehler in diesem rel. Feuchtebereich zu verkleinern. Ebenso sollte der Realteil des Brechungsindex mit einem Fehler kleiner 6% bestimmt werden. Der Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz der Partikel kann hingegen durch Literaturwerte, bzw. durch Annahmen substituiert werden.
- Neben der Schließung der Messungen des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand sowie bei bei Umgebungsfeuchte wurden mit Hilfe des gleichen Modellansatzes auch der Extinktions-, Streu-, Rückstreu- und Absorptionskoeffizient der Partikel im trockenen Zustand berechnet und mit den zugehörigen Messungen der verschiedenen beteiligten Verfahren geschlossen. Hierbei zeigten sich noch größere Differenzen zwischen den Modellwerten und den direkten Messungen mit Hilfe des Aerosolpho-

tometers von bis zu 77% (Streukoeffizient) bei einem sehr niedrigen Korrelationskoeffizienten von $R^2 = 0,25$.

- Der Vergleich der Modellrechnungen mit den Messungen des Nephelometers und des PSAP zeigte anhand der Korrelationsanalyse mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0,86$, dass das im Vergleich hierzu sehr niedrige Bestimmtheitsmaß beim Vergleich der Modellwerte mit den Aerosolphotometermessungen durch Partikelverluste im gemeinsamen Probenahmesystem von Nephelometer, PSAP und den Geräten zur Bestimmung der Größenverteilung (APS und DMPS) bedingt ist. Der systematische Unterschied (Abweichung der Regressionsgeraden von der 1:1-Korrelation) wird jedoch durch fehlerhafte Annahmen und Messfehler erklärt, da allein schon ein um 15% falsch im Modell angenommener aerodynamischer Formfaktor den beobachteten Unterschied verursachen kann. Aus diesem Grund ist die genaue Kenntnis der hier im Modell nur aus Literaturwerten entnommenen Partikeleigenschaften des aerodynamischen Formfaktors und der Dichte der trockenen Partikel für dieses Modell sehr wichtig. In Zukunft müssen diese zwei Partikeleigenschaften noch näher erforscht und am besten bei zukünftigen Schließungsexperimenten zusätzlich zu den bei LACE 98 bestimmten Eigenschaften erfasst werden.
- Insgesamt gesehen, kann man mit den Schließungsergebnissen der indirekten Schließung, insbesondere mit den Ergebnissen der Feuchtekorrektur des Extinktionskoeffizienten zufrieden sein. Es konnte gezeigt werden, dass allein durch konsequentes Anwenden der bekannten Physik der Aerosolpartikel die verschiedenen Messungen untereinander geschlossen und so ein konsistentes Bild der Partikeleigenschaften entworfen werden kann.

Als Ausblick und als Nachtrag zu diesem Kapitel sei auf Kapitel 6.4 hingewiesen. Dort werden physikalisch begründete Näherungsfunktionen auf Basis der in diesem Kapitel vorgestellten Modellrechnungen entworfen. Diese Näherungsfunktionen beschreiben verschiedene Partikeleigenschaften als Funktion der rel. Feuchte und des Aktivierungsparameters und formen das „Bild“ der Partikeleigenschaften mit Hilfe von leicht berechenbaren Formeln.

Teil IV

Angewandte Aerosolforschung

Überblick

Im vorangehenden Abschnitt, der direkten und indirekten Schließung, konnte ein konsistentes Bild der optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel während LACE 98 gezeigt werden. Ebenso wurde die Güte der verwendeten Messungen und der Modelle des Wachstums der Partikel als Funktion der rel. Feuchte, sowie des Kugelschalenmodells zur Berechnung der optischen Eigenschaften aus mikrophysikalischen Messungen dargestellt. In dem nun folgenden Teil IV, soll der zentrale Begriff der „Schließung“ erweitert werden:

Mit Hilfe von Auswertemodellen werden Anwendungen des bisher gezeigten, konsistenten Aerosoldatensatzes vorgestellt. Dieser Teil der Arbeit gliedert sich in folgende drei große Themengebiete:

1. meteorologische Anwendungen
 - (a) Messungen zur Energiebilanz der Atmosphäre: Volumenabsorption solarer Strahlung und Erwärmungsrate der Luft durch bodennahe Partikel
 - (b) Betrachtungen zur Wolkenphysik: Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen und maximale Übersättigung der Wolkenluft bei der Wolkenentstehung
 - (c) Sedimentation von Partikeln: Sedimentationsgeschwindigkeit und mittlere Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse relativ zur Umgebungsluft
 - (d) Näherungsfunktionen des Feuchteinflusses auf den Extinktions- und Streukoeffizienten, sowie auf die Sedimentationsgeschwindigkeit und der Massenflussdichte der Partikel relativ zur Umgebungsluft
2. medizinisch–toxikologische Anwendungen: Akkumulationsraten und Tagesdosis von Aerosolpartikelmasse durch Partikeldeposition in verschiedenen anatomischen Regionen der menschlichen Lunge
3. meteorologische und statistische Zusammenschau der Ergebnisse
 - (a) Messwertverteilungsfunktionen
 - (b) Trajektorienanalyse
 - (c) Zeitreihenanalyse
 - (d) Abhängigkeit der optischen Eigenschaften der trockenen Partikel von der Periodenlänge planetarer Wellen

Kapitel 6

Meteorologische Anwendungen

In diesem Kapitel wird der bisher schon vorgestellte LACE 98 -Datensatz mit Hilfe von drei Auswertemodellen hinsichtlich klimatologischer Fragestellungen aber auch Fragen aus den Bereichen der Wolkenphysik und des Strahlungshaushaltes untersucht. Im Bereich des Strahlungshaushaltes werden in Abschnitt 6.1 zunächst die Volumenabsorption solarer Strahlung in Partikeln und die zugehörige Erwärmungsrate der Luft durch bodennahe Partikel während LACE 98 betrachtet. In Abschnitt 6.2 wird für verschiedene Vertikalwindgeschwindigkeiten die maximale Übersättigung der Wolkenluft und die Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen bei der Wolkenentstehung aus Messungen berechnet und statistisch charakterisiert. Im Abschnitt 6.3 wird mit der massengewichteten mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit und der damit verbundenen Massenflussdichte der Partikel relativ zur umgebenden Luft auch der Senkenprozess der trockenen Deposition für Aerosolpartikel während LACE 98 abgeschätzt.

Neben der zunächst rein deskriptiven Darstellung der Ergebnisse sollen zum Ende dieses Kapitels in Abschnitt 6.4 dem Leser auch physikalisch motivierte Näherungsfunktionen zur Verfügung gestellt werden. Diese parametrisieren die Feuchteabhängigkeit der verschiedenen mit den unterschiedlichen Modellen berechneten Aerosolpartikeleigenschaften auf der Basis des LACE 98 -Datensatzes. Mit den so erstellten Näherungsfunktionen sind dann weiterführende Modellrechnungen mit einem im Vergleich zu den ursprünglichen Modellen deutlich geringeren Rechenaufwand beispielsweise in Klimamodellen auf der Basis des LACE 98 -Datensatzes möglich.

Eine detaillierte Sensitivitätsanalyse der einzelnen Auswertemodelle zeigt dem Leser, welche mikrophysikalischen Eingangsgrößen mit besonderer Sorgfalt bestimmt werden müssen, um eine gewünschte Genauigkeit der Modellvorhersagen zu erhalten. Eine solche Sensitivitätsanalyse ist insbesondere hilfreich bei der Definition von Forschungsschwerpunkten und der Planung zukünftiger Messkampagnen. Als Beispiel und als Vorgriff zu den Ergebnissen sei hier erwähnt, dass

bei zukünftigen Messkampagnen die Dichte und der aerodynamische Formfaktor der trockenen Partikel als wichtige Partikeleigenschaften erforscht werden sollten. Diese Forderung wurde auch schon als Ergebnis der Sensitivitätsanalyse im Rahmen der indirekten Schließung der optischen Eigenschaften der Partikel in Kapitel 5 gestellt.

6.1 Energiebilanz der Atmosphäre

In diesem Abschnitt wird der LACE 98 -Datensatz hinsichtlich der Erwärmungsrate der Luft und der Volumenabsorptionsrate der Strahlung durch bodennahe, atmosphärische Aerosolpartikel – im Folgenden nur noch verkürzt Erwärmungsrate und Volumenabsorption genannt – ausgewertet. Als Grundlage dienen hierzu im Rahmen dieser Arbeit erstellte Messungen des solaren Strahlungsangebotes mit dem Sieben-Sensor-Bilanzphotometer und Messungen des mittleren solaren Absorptionskoeffizienten mit Hilfe des Aerosolphotometers während LACE 98 (vgl. Abschnitt 2.4 auf Seite 48). Die Untersuchung der Erwärmungsrate der Luft durch Partikel und der Volumenabsorptionsrate der Strahlung in Partikeln der bodennahen Grenzschicht ist vor allem deshalb von Interesse, da hier, nahe den stärksten Quellen der Aerosolpartikel bzw. deren Vorläufersubstanzen, die höchste Partikelkonzentration und im wolkenfreien Fall somit auch die stärkste Interaktion von Aerosolpartikeln mit dem solaren Strahlungsfeld in der Atmosphäre zu erwarten ist. So berichtet *Komguem* [1999] für die Station von Potsdam (1981-1995) an wolkenfreien Tagen für den Bereich der bodennahen Grenzschicht von einer optischen Dicke der Partikel im Bereich zwischen 0,01 – 0,60, der eine optische Dicke von 0,02 der Partikel in der freien Troposphäre und der Stratosphäre zusammengekommen gegenübersteht. *Busen & Hänel* [1987a] berichtet für die Station Frankfurt eine tägliche Erwärmung der untersten Luftschicht von bis zu maximal 1,26[K] in der Zeitspanne von Jan. 1982 bis Feb. 1984 und *Carlson & Benjamin* [1980] geben sogar einen Wert von 1,5[K] für die unterste Luftschicht in der Sahara an. Diese Befunde aus der Literatur unterstreichen nochmals die Klimarelevanz der bodennahen Partikel. Wie schon frühere Untersuchungen (z.B. *Hänel & Kastner* [2000]; *Hannessen* [1995]) gezeigt haben, sind sowohl die Erwärmungsrate der Luft durch Partikel, als auch die Volumenabsorptionsrate mit einer starken zeitlichen Variabilität belegt, die primär mit der Variabilität der direkten Sonnenstrahlung gekoppelt ist. Diese starke Variabilität erfordert eine hohe zeitliche Auflösung der Messungen des Strahlungsangebotes. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Datenerfassung des Sieben-Sensor-Bilanzphotometers soweit verbessert, dass nunmehr Minutenmittelwerte des Strahlungsangebotes zur weiteren Auswertung zur Verfügung stehen. Auf dieser Datenbasis werden in diesem Kapitel die Ergebnisse der Messungen des Strahlungsangebots, sowie die daraus resultierende

Volumenabsorption, die Erwärmungsrate und die tägliche Erwärmung der Luft durch bodennahe Partikel für die Kampagne LACE 98 charakterisiert und mit den Ergebnissen früherer Kampagnen (z.B. Hänel & Kastner [2000]) verglichen.

6.1.1 Auswertgleichungen

Die theoretischen Grundlagen zur Bestimmung des Strahlungsangebotes S aus den Messungen des Sieben-Sensor-Bilanzphotometers wurden schon in Kapitel 2.4 auf Seite 48 vorgestellt.

Mit Hilfe des gemessenen solaren Strahlungsangebots kann bei bekannten mittleren Absorptionskoeffizienten der Partikel im solaren Spektralbereich (σ_a) die Erwärmungsrate der Luft durch Partikel nahe dem Erdboden berechnet werden. Die Luft habe die Dichte ρ_L und die spezifische Wärme bei konstantem Druck c_{pL} . Es gilt für die Volumenabsorptionsrate \mathcal{A} und die Erwärmungsrate der Luft \mathcal{E} :

$$\mathcal{A} = \int_{0,3\mu\text{m}}^{3,5\mu\text{m}} \sigma_{a\lambda} S_\lambda d\lambda = \sigma_a(f=0) * \xi_a(f) S \quad (6.1)$$

$$\mathcal{E} = \left(\frac{dT}{dt} \right) = \frac{1}{\rho_L c_{pL}} \mathcal{A} \quad (6.2)$$

S_λ spektrales Strahlungsangebot bei der Wellenlänge λ .

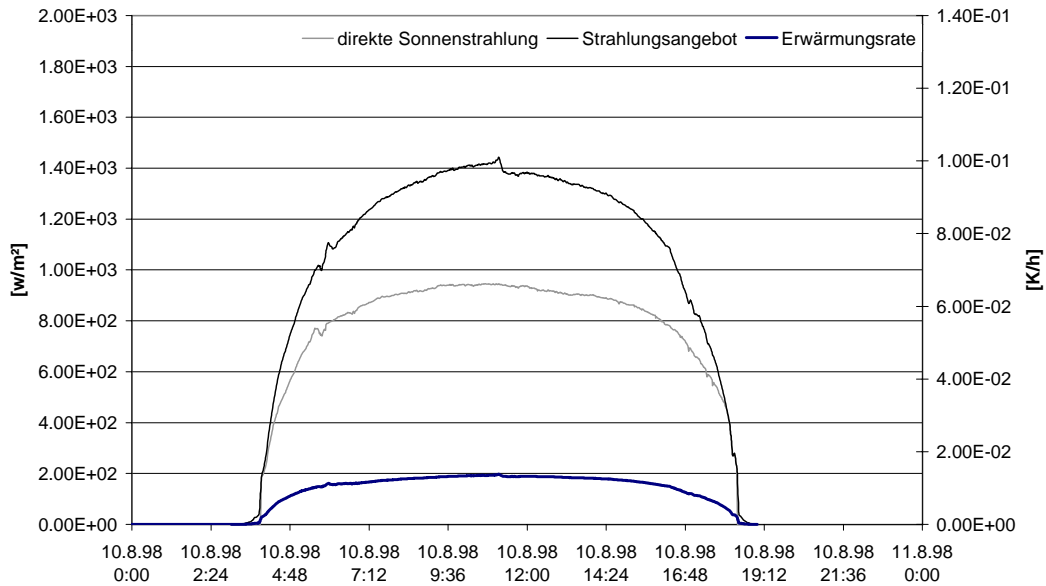
$\xi_a(f) = \frac{\sigma_a(f)}{\sigma_a(f=0)}$ Feuchtekorrekturfaktor des gemessenen Absorptionskoeffizienten der trockenen Partikel $\sigma_a(f=0)$. Dieser Faktor wurde mit Hilfe des in Kapitel 5.3 auf Seite 92 vorgestellten „Kugelschalenmodells“ berechnet.

S Strahlungsangebot im solaren Spektralbereich von $\lambda = 0,3 \dots 3,5\mu\text{m}$.

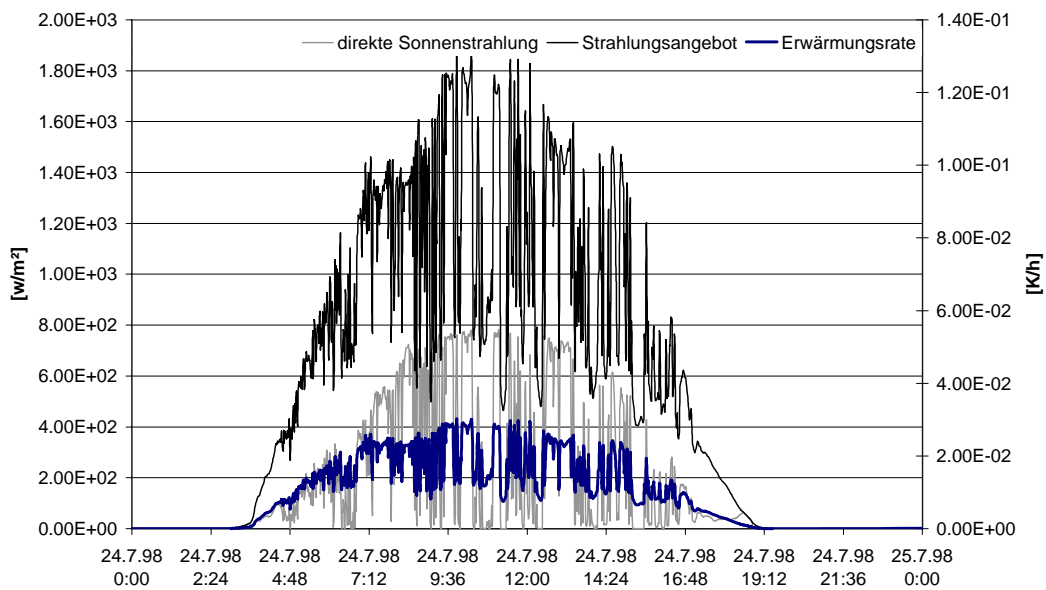
T Temperatur der Luft

Integriert man die Erwärmungsrate durch Partikel über die Dauer der Tageslichtperiode, so erhält man die Erwärmung der Luft während des ganzen Tages (ΔT_p) durch die Absorption von solarer Strahlung in Aerosolpartikeln. Im Folgenden wird (ΔT_p) kurz „tägliche Erwärmung“ genannt). Es gilt:

$$\Delta T_p = \int_{\text{Tageslichtperiode}} \mathcal{E} dt \quad (6.3)$$



(a) Strahlungstag 10.08.1998 mit nahezu idealem Verlauf der Messgrößen



(b) Typischer Tag mit durchbrochener Bewölkung 24.07.1998

Abbildung 6.1: Typischer Tagesgang des Strahlungsangebotes, der direkten Sonnenstrahlung und der Erwärmungsrate während LACE 98 für (a) einen nahezu idealen Strahlungstag (10.08.1998 Jul. Tag 221) und (b) einen Tag mit durchbrochener Bewölkung (24.07.1998 Jul. Tag=204).

6.1.2 Ergebnisse

In den Abbildungen 6.1(a) und 6.1(b) auf der vorherigen Seite sind für einen Strahlungstag (Tag ohne Bewölkung) und einen typischen Tag mit durchbrochener Bewölkung die gemessenen Tagesgänge des Strahlungsangebotes S , der direkten Sonnenstrahlung, und die Erwärmungsrate aufgetragen. Ein nahezu idealer Tagesverlauf, ohne den Einfluss von Wolken, konnte am 10.08.1998 (Julianischer Tag 221) beobachtet werden (Abbildung 6.1(a)). Kurz nach Sonnenaufgang wird an diesem Tag zunächst das Strahlungsangebot von der direkten Sonnenstrahlung bestimmt. Mit zunehmender Höhe der Sonne über dem Horizont wächst der diffuse Anteil des Strahlungsangebots zunächst stark an. Bereits 20 Minuten nach Sonnenaufgang stellt der diffuse Anteil 20% des Strahlungsangebots. Das Maximum an diesem Tag von 1430 Wm^{-2} erreicht das Strahlungsangebot bei Sonnenhöchststand. Gleichzeitig nimmt der diffuse Anteil des Strahlungsangebotes mit 34% seinen maximalen Wert an diesem Tage ein. Dieser selbst für einen Strahlungstag extrem niedrige Anteil der diffusen Strahlung am Strahlungsangebot zeigte sich einem Beobachter in Form eines durch die Rayleigh Streuung an Luftmolekülen tiefblau gefärbten Himmels. Zurückzuführen ist der geringe Anteil der Streustrahlung auf die an diesem Tag herrschende extrem niedrige Partikelkonzentration sowohl am Boden (Messungen mit dem Aerosolphotometer) als auch in der Höhe (Lidar-Messungen *Ansmann et al.* [2002]). So zeigen Berechnungen mit Hilfe des Auswertemodells von Strahlungsmessungen nach *Komguem* [1999] eine optische Dicke von nur 0,05 der Partikel der planetaren Grenzschicht. Die während dieses Tages erzielte tägliche Erwärmung ΔT_p der Luft betrug deshalb trotz des hohen Strahlungsangebotes nur $0,15[\text{K}]$, einen für LACE 98 nur durchschnittlichen Wert von ΔT_p (vgl. hierzu auch Abbildung 6.2 auf der nächsten Seite).

Ein anderes Bild zeigt sich am 24.07.1998, einem Tag mit durchbrochener Bewölkung. Der diffuse Anteil des Strahlungsangebotes betrug hier zwischen Sonnenauf- und Sonnenuntergang durchschnittlich 80% und fiel auf Basis von Minutenmittelwerten niemals unter 50%. Das Strahlungsangebot erreichte durch den hohen diffusen Anteil an diesem Tag kurzfristig sogar Werte über 1800 Wm^{-2} . Diese Werte des Strahlungsangebots liegen hierbei ca. 30% über dem Wert der Solarkonstanten E_{Sonne} von 1379 Wm^{-2} , die die Strahlungsflussdichte der direkten Sonnenstrahlung am Oberrand der Atmosphäre angibt. Der höchste während LACE 98 gemessene Wert des Strahlungsangebotes betrug auf Basis von Minutenmittelwerten 2140 Wm^{-2} . Mit 63% diffusem Anteil wurde auch gleichzeitig der höchste Wert der diffusen Komponente des Strahlungsangebots mit 1350 Wm^{-2} gemessen.

Für photochemische Reaktionen bedeutet dies, dass die höchsten Photodissoziationsraten und somit auch die höchsten Reaktionsgeschwindigkeiten an Tagen mit durchbrochener Bewölkung zu erwarten sind. Das solare Strahlungsangebot S

reicht allerdings nicht aus, um direkt Photodissoziationsraten zu bestimmen. Für die Lösung der zugehörigen Integralgleichung (vgl. *Graedel & Crutzen [1994]*) sind spektral aufgelöste Messungen des Strahlungsangebotes notwendig.

Die tägliche Erwärmung der Luft ΔT_p durch bodennahe Partikel ist für LACE 98 in Abbildung 6.2 abgebildet. Ebenfalls eingetragen ist der zugehörige, aus ΔT_p leicht zu berechnende Integralwert der Volumenabsorptionsrate (vgl. Gl. 6.2), also die während der Tageslichtperiode absorbierte solare Strahlungsenergie in Einheiten von [$1Whm^{-3} = 3600Jm^{-3}$]. Bei einer Standardabweichung von 0,065[K] beträgt die tägliche Erwärmung im Mittel 0,137[K]. Dies entspricht einer täglich absorbierten Strahlungsenergie von 0,047 [Whm^{-3}] = 169 [Jm^{-3}]. Die stärkste tägliche Erwärmung ΔT_p wurde mit 0,32[K], die geringste mit 0,038[K] beobachtet.

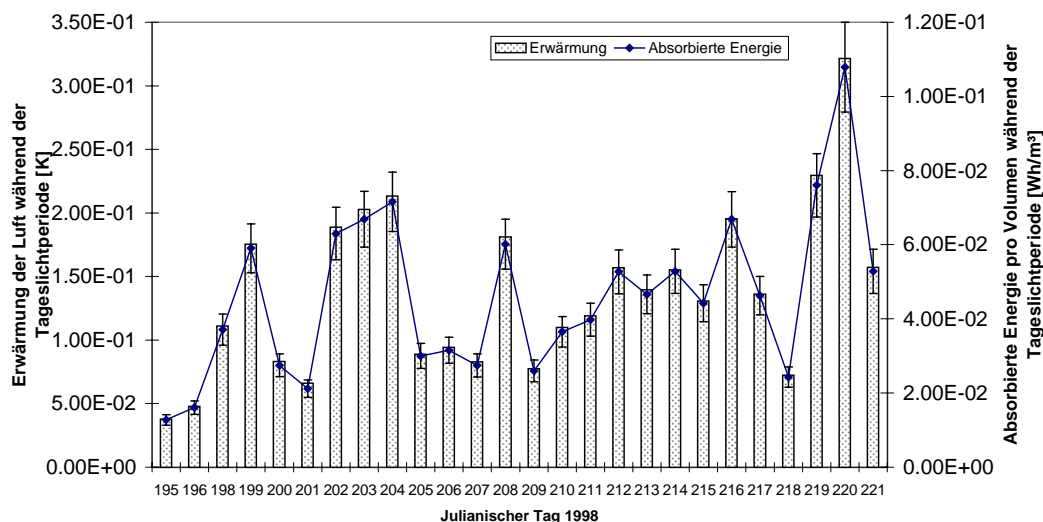


Abbildung 6.2: Tägliche Erwärmung der Luft ΔT_p (primäre Ordinate) und absorbierte Energie in Volumen von $1m^3$ Luft (sekundäre Ordinate) durch Absorption solarer Strahlung in Partikeln während der Tageslichtperiode.

Einen Vergleich der während LACE 98 beobachteten Erwärmungsraten \mathcal{E} und der täglichen Erwärmung ΔT_p zu früheren Messkampagnen verschiedener Autoren (vgl. *Hänel & Kastner [2000]*) ist in Tabelle 6.1 einzusehen. Der direkte Vergleich bestätigt die Klassifizierung des Messstandortes Falkenberg während der Feldmesskampagne LACE 98 als Messort, der gelegentlich von anthropogenen Partikelquellen (u.a. vom Großraum Berlin) beeinflusst wird. Die hier vorgestellten Messungen können aus den folgenden zwei Gründen sehr gut mit Messungen auf dem Kleinen Feldberg (KLF) von *Hänel & Kastner [2000]* (Aug.–Sept. 1997) verglichen werden.

- Der Kleine Feldberg ist, bedingt durch seine exponierte Höhenlage (826

m.ü.N.N.) und seine geographische Lage am Nordrand des Rhein-Main-Gebietes im Normalfall außerhalb der Hauptabluftfahne dieser Region. Befindet sich der Kleine Feldberg unterhalb einer Inversion oder wird durch Täler orographisch kanalisiert anthropogen kontaminierte Luft herangeführt, so werden auch auf dem Kleinen Feldberg – wie auch während LACE 98 – hohe Partikelbelastungen beobachtet [Wetter, 1998; Bundke, 1997].

- Die Messungen auf dem Kleinen Feldberg fanden ebenfalls während der Sommermonate statt, so dass saisonale Unterschiede des Strahlungsangebotes durch unterschiedliche Sonnenhöchststände bei einem Vergleich nicht berücksichtigt werden müssen.

So stimmen die Mittelwerte der täglichen Erwärmung von 0,14K (KLF) und 0,137K (LACE 98) sehr gut miteinander überein. Die Messungen am Kleinen Feldberg zeigen lediglich eine ca. doppelt so große Variabilität mit einer Standardabweichung von ΔT_p von 0,16K (0,065K während LACE 98). Setzt man ΔT_p ins Verhältnis zur Differenz zwischen der erreichten Minimum- und Maximumtemperatur (Tagesamplitude der Temperatur)¹, so zeigt sich, dass während LACE 98 die tägliche Erwärmung durch bodennahe Partikel einen Anteil von 0,5- 3% an der Tagesamplitude der Temperatur besitzt. Eine ähnliche Untersuchung von *Hannessen* [1995] zeigte mit 2-10% einen wesentlich höheren Anteil von ΔT_p an der Tagesamplitude der Temperatur in den Winter und Frühjahrsmonaten. Dieser hohe Anteil war zu erwarten, da **(a)** im Winter und im Frühjahr im Vergleich zu den Sommermonaten allein schon durch die geringe Sonnenhöhe eine geringere Erwärmung der Luft durch Absorption von direkter Sonnenstrahlung am Boden bedingt ist. **(b)** Der relative Anteil von ΔT_p an der Tagesamplitude der Temperatur steigt im Winter und Frühjahr gegenüber den Sommermonaten an. Dies ist dadurch bedingt, dass die Volumenabsorption –bei gleichem Strahlungsangebot– unabhängig² von der Sonnenhöhe über dem Horizont ist.

Der von *Hänel & Kastner* [2000] gefundene lineare Zusammenhang (vgl. Gleichung 6.4) zwischen der maximalen Erwärmungsrate $\bar{\epsilon}_{max}$ der Luft (auf Basis von 30-Minuten-Mittelwerten) und der am gleichen Tag erzielten Erwärmung

¹Die Tagesamplitude der Temperatur wird hier als ein Maß für die tägliche Erwärmung durch alle Erwärmungsprozesse am jeweiligen Tag verwendet. Für einen korrekten Vergleich müsste die beobachtete Erwärmungsrate der Luft über die Tageslichtperiode integriert und ins Verhältnis zu ΔT_p gesetzt werden. Dies wurde hier nicht vorgenommen, um mit *Hannessen* [1995] vergleichbare Werte zu erhalten

²Die Volumenabsorption ist proportional zum Strahlungsangebot und somit bei gleichem Strahlungsangebot unabhängig von der Einfallrichtung der direkten Strahlung. Im Gegensatz dazu ist die Absorption der direkten Sonnenstrahlung am Boden proportional zu $\cos(\theta_{\text{Sonne}})$ und somit (auch bei gleichem Strahlungsangebot) stark von der Sonnenhöhe über dem Horizont abhängig.

Autor	Ort	Datum	Tage	\mathcal{E} [K/h]	ΔT_p [K]
Roach [1961]	ECH	Apr.-Okt. 1959	9	0,012-0,25	-
Murai et al. [1976]	TOK	Nov.-Jan 1974/75	5	0,013-0,13	-
Busen & Hänel [1987a]	PIU/ MTO	Okt. 1985	15	0,013-0,36	0,08-1,43
Busen & Hänel [1987b]	FFM	Jan. 1982-Feb. 1984	29	0,029-0,28	0,05-1,26
Hänel et al. [1990]	FFM	Jan., März 1987	7	0,012-0,26	0,06-1,32
Hannessen [1995]	FFM/ KLF	Jan.-Mai 1995	13	0,014-0,14	0,08-0,56
Hänel & Kasner [2000]	FFM	Aug.-Sept. 1997	16	0,008-0,13	0,03-1,14
Hänel & Kasner [2000]	KLF	Aug.-Sept. 1997	11	0,003-0,083	0,02-0,58
diese Arbeit	LACE 98	Jul.-Aug. 1998	26	0,008-0,037	0,04-0,32

Tabelle 6.1: Variationsbreite der Erwärmungsrate \mathcal{E} und der täglichen Erwärmung der Luft während der Tageslichtperiode ΔT_p durch bodennahe Partikel verschiedener Autoren: Tabelle modifiziert nach Hänel & Kasner [2000] (ECH=Ärmelkanal, FFM=Frankfurt am Main (125 m.i.N.N.), KLF=Kleiner Feldberg (Taunus, 826 m.i.N.N.), PIU=Piumazzo (Po-Ebene Italien), MTO= Monteombraro (720m.i.N.N.)(Apenninen nahe Piumazzo /Italien, TOC=Tokyo /Japan)

ΔT_p der Luft während der Tageslichtperiode durch Partikel konnte während LACE 98 ebenfalls beobachtet werden. Es gilt:

$$\Delta T_p = A_1 \bar{\mathcal{E}}_{\max} + A_2 \quad (6.4)$$

zu Gleichung 6.4	A_1 [h]	A_2 [k]	R^2
<i>Hänel & Kastner</i> [2000]	$7,88 \pm 0,53$	$-0,05 \pm 0,04$	0,88
diese Arbeit	$7,95 \pm 0,99$	$0,0018 \pm 0,01$	0,73

Die Regressionskoeffizienten A_1 und A_2 stimmen innerhalb der Fehlergrenzen gut überein. Die Bestätigung dieses doch recht überraschenden Zusammenhangs ermöglicht –unter Verwendung von Gleichung 6.4 und 6.2 sowie einer Parametrisierung des Strahlungsangebotes als Funktion des Wolkenbedeckungsgrades aus Messungen der direkten Sonnenstrahlung und der Globalstrahlung (vgl. *Hänel & Kastner* [2000] Gl. (16a–16d))– eine einfache Abschätzung von ΔT für jeden beliebigen Absorber, dessen Volumenabsorptionskoeffizient bekannt ist. Als Absorber kann so, neben den hier in dieser Arbeit verwendeten Absorptionskoeffizienten von Aerosolpartikeln, auch beispielsweise die tägliche Erwärmung durch Wasserdampf als Absorber betrachtet werden.

6.1.3 Fehler / Sensitivitätsanalyse

Die Gaussche Fehlerfortpflanzung der Gleichungen 6.2 und 6.2 ergibt, dass die partiellen relativen Fehler (isoliert betrachteter Fehler der einzelnen Einflussgrößen) bei der Bestimmung der Erwärmungsrate und der Volumenabsorptionsrate direkt proportional zu den Messfehlern der einzelnen Einflussgrößen (Strahlungsangebot, Absorptionskoeffizient und Modellfehler bei der Feuchtekorrektur des Absorptionskoeffizienten) sind. Vergleiche hierzu auch die Tabellen 6.2(a) auf der nächsten Seite und 6.2(b). Der Gesamtfehler der resultierenden Erwärmungsrate \mathcal{E} beträgt demzufolge gemäß der Gausschen-Fehlerfortpflanzung 6–22%. Hierbei setzt sich der Gesamtfehler praktisch gleichrangig aus den resultierenden Fehlern durch Unsicherheiten bei der Bestimmung des Absorptionskoeffizienten, des Feuchtekorrekturfaktors des Absorptionskoeffizienten, sowie des Strahlungsangebotes zusammen.

Der Feuchtekorrekturfaktor ξ_a zeigt im Bereich der relativen Luftfeuchtigkeit von 40-70% seinen maximalen Fehler mit einem Medianwert von ca. 12%. Außerhalb dieses Feuchtebereiches ist der Medianwert des Fehlers kleiner 10%. Die Feuchtekorrektur des Absorptionskoeffizienten ist im Bereich zwischen 40–70%

³Da der Absorptionskoeffizient als Mittelwert für den Zeitraum der Filterbelegung eingeht, können kurzfristige Schwankungen des Absorptionskoeffizienten zu größeren Fehlern führen

f [%]	$\Delta\xi_a$ [%]								
	Gesamtfehler	ΔB_0	Δn_0	Δk_0	Δf_{sm}	Δf	$\Delta \kappa_0$	$\Delta \rho_0$	
20 - 30	3,34	0,24	1,48	0,17	0,49	0,05	0,83	1,76	
30 - 40	9,28	0,66	2,13	0,54	1,81	0,11	2,82	5,52	
40 - 50	12,34	3,75	1,99	0,49	3,46	1,28	4,04	2,97	
50 - 60	11,06	2,12	1,95	0,43	2,24	0,83	2,59	2,77	
60 - 70	12,02	4,59	8,43	0,44	1,48	0,88	0,94	2,91	
70 - 80	9,07	1,37	2,61	0,44	1,88	0,94	2,27	2,50	
80 - 90	7,06	0,98	3,83	0,42	1,61	0,92	1,84	2,02	
90 - 95	5,49	0,92	3,31	0,33	1,47	1,21	1,21	1,28	
95 - 98	6,43	0,72	3,44	0,31	2,39	0,87	1,44	1,49	
Fehler der Eingangsgröße		10%	6%	10%	10%	1%	10%	10%	

(a) Medianwerte des Modellfehlers von $\xi_a = \frac{\sigma_a(f)}{\sigma_a(f=0)}$ auf Basis aller Modellrechnungen während LACE 98 in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f . In der ersten Spalte ist der prozentuale Gesamtfehler von ξ_a angegeben, der aus den in der untersten Tabellenzeile notierten Messfehlern der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der partiellen Fehler der einzelnen Einflussgrößen ist in den folgenden sieben Spalten aufgelistet (B_0 Aktivierungsparameter, $n_0 - ik_0$ komplexer Brechungsindex der trockenen Partikel, f_{sm} Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz und f relative Feuchtigkeit der Umgebungsluft, κ_0 aerodynamischer Formfaktor- und ρ_0 Dichte der trockenen Partikel).

Messgröße	resultierender Fehler	
Wärmekapazität der Luft	<1%	
Luftdichte	<1%	
Absorptionskoeffizient ³	1–10%	
Feuchtekorrektur v. σ_a	3–13%	‡ s. Tabelle 6.2(a)
Strahlungsangebot	5–15%	† Sonnehöhe über 5 Grad
Gesamtfehler von \mathcal{E}	6–22%	

(b) Fehlerabschätzung der Erwärmungsrate \mathcal{E} durch Partikel. (†) näheres s. Hannessen [1995], (‡) s. Tabelle 6.2(a).

Tabelle 6.2: Fehleranalyse: Erwärmungsrate

relativer Luftfeuchtigkeit besonders sensitiv gegenüber Unsicherheiten **a)** des Realteils des Brechungsindex der trockenen Partikel ($\Delta n \approx 2 \dots 8\%$) und **b)** der Radiuskorrektur der Größenverteilungsmessung (aerodynamischer Formfaktor $\Delta \kappa_0 \approx 3 \dots 4\%$), Dichte der Partikel im trockenen Zustand ($\rho_0 \approx 3\%$). Ebenfalls maximal ist in diesem Feuchtebereich der partielle Fehler des Aktivierungsparameters ΔB_0 mit $\approx 4\%$.

6.2 Wolkenphysik

In diesem Abschnitt werden die von *Hänel* [1987b] entwickelten Parametrisierungen zur Bestimmung der maximalen Übersättigung bei der Wolkenentstehung und der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit und der mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel für den LACE 98 -Datensatz modifiziert und angewendet. Ziel ist es, diese beiden für die Wolkenphysik wichtigen Größen aus den in dieser Arbeit bereitgestellten Verfahren und Messergebnissen abzuleiten und somit den LACE 98 -Datensatz auch wolkenphysikalisch zu charakterisieren.

6.2.1 Modell

Maßgebend für die Aktivierung von Aerosolpartikeln ist die maximale Übersättigung s_m , der die Partikel während des Wolkenbildungsprozesses ausgesetzt werden. Die maximale Übersättigung ist folgendermaßen definiert:

$$s_m = f_m - 1 \quad (6.5)$$

f_m =maximale relative Feuchte der Wolkenluft

Aktivierungsprozess

Partikel heißen aktiviert (wachsen instabil), wenn ihr Radius größer als der kritische Radius r_c ist und sie gleichzeitig infolge Wasserdampfkondensation wachsen. [*Fitzgerald*, 1974]

Aus der Gleichgewichtsthermodynamik ergibt sich diese Situation, wenn ihre kritische Feuchte f_{rc} kleiner als die maximale rel. Feuchte f_m der Wolkenluft ist:

Aktivierungskriterium der Gleichgewichtsthermodynamik:

$$f_{rc} < f_m \quad (6.6)$$

In Abbildung 6.3 werden die Größen f_{rc} und r_c bildlich anhand der Kelvin-Köhler-Kurve der relativen Feuchte über einem Partikel ($R_0=10\text{nm}$, $B_0=0,7$,

$T=273\text{K}$) im Gleichgewicht mit seiner Umgebung nahe der Sättigungsfeuchte ($f=1$) veranschaulicht.

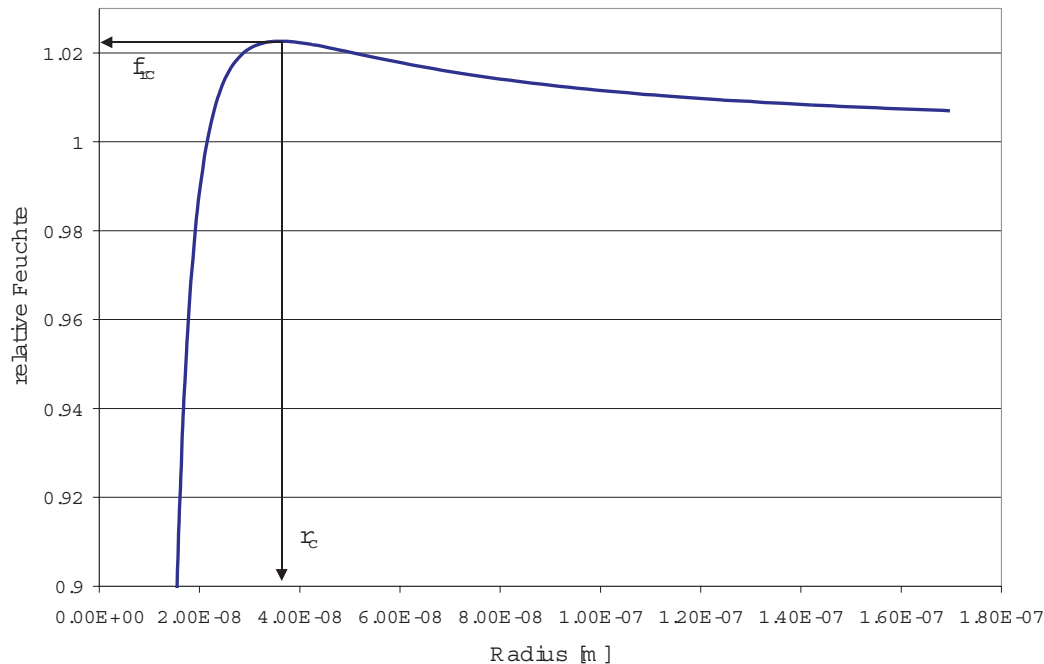


Abbildung 6.3: Gleichgewichtsradius eines Partikels nahe der Sättigungsfeuchte $f=1$ ($R_0=10\text{nm}, B_0=0,7, T=273\text{K}$). Die kritische Feuchte f_{rc} wird aus der Bedingungsgleichung für das Maximum der eingezeichneten Kurve in der Form $\left(\frac{d \ln f}{dr}\right)_{f=f_{rc}} = 0$ berechnet. Für den kritischen Radius gilt dann: $r_c = r(f_{rc})$

Das Aktivierungskriterium (Gleichung 6.6) ist erfüllt für Partikel, deren Radius im trockenen Zustand größer als der sogenannte kritische Trockenradius r_{dc} ist. Nach Hänel [1987b] gilt:

$$r_{dc} = \frac{r_{cc}}{\sqrt[3]{1 + \frac{B_0}{A_0/r_{cc} - \ln f_m}}} \quad (6.7)$$

$$r_{cc} = \begin{cases} 3A_0/4B_0 & B_0 = \ln f_m \\ \frac{A_0 B_0}{3 \ln f_m (B_0 - \ln f_m)} \left[1 - \frac{3 \ln f_m}{B_0} + \left(1 + \frac{3 \ln f_m}{B_0} \right)^{1/2} \right] & B_0 \neq \ln f_m \end{cases}$$

r_{cc} Kritischer Radius eines Partikels mit dem kritischen Trockenradius r_{dc}

In dieser Modellvorstellung werden zuerst große Partikel aktiviert. Mit zunehmender Übersättigung werden dann sukzessive auch kleinere Partikel aktiviert.

Durch die Verwendung des Gleichgewicht-Modells für das Kondensationswachstum der Partikel wird nicht berücksichtigt, dass sehr große Partikel, bedingt durch ihre sehr lange thermodynamische Relaxationszeit, nur sehr langsam wachsen. Aus diesem Grund erreichen diese Partikel während des relativ kurzen Zeitraumes, in dem die maximale Übersättigung in der entstehenden Wolke erreicht wird, nicht ihren Gleichgewichtsradius, der zu ihrer Aktivierung ausgereicht hätte und werden folglich auch nicht aktiviert. In einer Wolke finden sich nach dem Erreichen der maximalen Übersättigung folgende drei Typen von Partikeln und Wolkentropfen:

1. Kleine, nicht aktivierte Aerosolpartikel im Gleichgewicht mit der Umgebungfeuchte (engl. Interstitial Aerosol)
2. Aktivierte Tropfen, die instabil wachsen
3. Große, nicht aktivierte Partikel, die stabil wachsen

Maximale Übersättigung und Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen

Unter dem Begriff „wachsende Wolkentropfen“ werden nun die stabil wachsenden großen Partikel und die aktivierten Tropfen zusammengefasst. In beiden Fällen ist das Volumen des kondensierten Wassers groß im Vergleich zum Volumen des Partikels im trockenen Zustand. Ihre Anzahlkonzentration ist definiert durch:

$$n_{sg} = \sum_{r_{dj} > r_{dc}} n_{sj} \quad (6.8)$$

n_{sj} =Anzahlkonzentration der Partikel (bei Standardbedingungen) mit dem Volumenäquivalenzradius r_{dj}

Nach Hänel [1987b] bestimmt folgende implizite Gleichung die maximale Übersättigung als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit w des –aus aktuellen Messdaten berechneten– Aktivierungsparameters B_0 (vgl. Anhang B.3) und des Krümmungsparameters $A_0(T)$ als Funktion der aktuellen Temperatur (vgl. Gleichung 5.7 auf Seite 82). Als weitere Eingangsgröße benötigt man noch die jeweils aktuell gemessene Größenverteilung der trockenen Partikel n_{sj} :

$$s_m = F \frac{Xw + (2A_0/3) n_{sg}(s_m) - (A_0/3B_0)^{5/2} B_0 n_-(s_m)}{\sqrt{3B_0/A_0} n_+(s_m) + (A_0/3B_0) n_{sg}(s_m)} \quad (6.9a)$$

mit

$$n_+(s_m) = \sum_{r_{dj} > r_{dc}(s_m)} n_{sj} r_{dj}^{3/2} \quad (6.9b)$$

$$n_-(s_m) = \sum_{r_{dj} > r_{dc}(s_m)} n_{sj} r_{dj}^{-3/2} \quad (6.9c)$$

$$\begin{aligned} X &= \rho_{L0} f_1 / (4\pi \rho_W f_2 D_\infty) \\ &= \exp(-6,639 - 0,03795 [\text{K}^{-1}] T) \\ &\quad \times \exp(0,00005425 [\text{K}^{-2}] T^2) \end{aligned} \quad (6.9d)$$

F ist eine empirische Korrekturfunktion der Form:

$$F = a [w/1 \text{ cm sec}^{-1}]^b [1 - \ln(w/1 \text{ cm sec}^{-1})/10] \quad (6.9e)$$

mit

$$\begin{aligned} a &= \left[B_0 + n_+ / (31 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 / n_s) \right] / 10 \\ &\quad + \exp(-129,168 - 11,6451 Y - 0,344007 Y^2 - 0,00331294 Y^3) \\ b &= -2,58730 - 0,551647 Z - 0,0299979 Z^2 - 0,000478969 Z^3 \\ Y &= \ln(B_0 n_+^2 / n_s) \\ Z &= \ln(1 \text{ cm}^{1/2} B_0 n_+^{5/3} / n_s^{2/3}) \\ n_+ &= \sum_{j=1}^l n_{sj} r_{dj}^{3/2} \end{aligned}$$

$$\text{mit } -37,3 \leq Y \leq -22,3 \text{ und } -47,1 \leq Z \leq -31,8$$

Gleichung 6.9a wird nun numerisch, iterativ gelöst. Als Startwerte wählt man: $n_{sg} = n_s$, $n_+(s_m) = n_+$ und $n_-(s_m) = n_-$ aller Partikel. Mit diesen Startwerten erhält man eine erste Näherung $(s_m)_{i=1}$ nach Gleichung 6.9a. Einsetzen von $(s_m)_i$ liefert jetzt die i 'te Approximation von $(n_{sg})_i$ nach Gleichung 6.8, $(r_{dc})_i$ nach Gleichung 6.7 und $(n_+(s_m))_i$ und $(n_-(s_m))_i$ nach den Gleichungen 6.9b–6.9c.

Im nächsten Iterationsschritt verwendet man die berechnete i 'te Approximation wieder als Eingangswert zur Berechnung von $(s_m)_{i+1}$. Man wiederholt diesen Iterationsschritt, bis die Folgeschrittweite $(s_m)_{i+1} - (s_m)_i$ nach der $(i+1)$ 'ten Iteration einen definierten Grenzwert⁴ unterschreitet.

⁴**Abbruchkriterium für die Iteration:** $\frac{(s_m)_{i+1}}{(s_m)_i} - 1 < 1 \times 10^{-3}$ Dieses Abbruchkriterium stellt einen Kompromiss zwischen der vom Algorithmus benötigten Rechenzeit und der erzielten numerischer Genauigkeit dar.

6.2.2 Ergebnisse

Die Ergebnisse des oben vorgestellten Auswertemodells für n_{sg} und s_m liegen in Form von Zeitreihen mit einer zeitlichen Auflösung von 15 min als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit vor. In den Abbildungen (6.4 auf Seite 125) und (6.5 auf Seite 126) werden diese Zeitreihen statistisch charakterisiert. Aufgetragen sind die Perzentil-Werte (Quantile im 10%-Abstand) von s_m und n_{sg} als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit w . Besonders hervorgehoben sind das 0%-Quantil = Minimum, der Median=50%-Quantil und das 100%-Quantil = Maximum. Am Oberrand der Zeichnung sind qualitativ die Bereiche der Vertikalwindgeschwindigkeiten in Nebel, Cumulusbewölkung und Gewitterwolken angegeben. Die Ergebnisse werden im Folgenden diskutiert.

Maximale Übersättigung in Wolken

Allgemein zeigt sich eine in nullter Näherung einem Potenzgesetz folgende Zunahme der maximalen Übersättigung s_m . So nimmt der Medianwert von s_m um den Faktor 33 von $6,5 \cdot 10^{-4}$ bei Nebel ($w=3,6 \text{ cm s}^{-1}$) auf $2,16 \cdot 10^{-2}$ in Gewitterwolken ($w=30 \text{ m s}^{-1}$) zu. Der Quotient zwischen dem 90%- und dem 10%-Quantil ist mit einem Faktor von 1,5-1,66 für alle Vertikalwindgeschwindigkeiten praktisch konstant. Das bedeutet, dass 80% aller Werte für den LACE 98 - Datensatz innerhalb dieses Faktors bei gegebener Vertikalwindgeschwindigkeit liegen. Der Quantilsdarstellung überlagert sind Ergebnisse von Hänel [1987b], die die maximale Übersättigung in Wolken für die in Tabelle 6.3 aufgeführten Aerosoltypen kennzeichnen:

Aerosol Typ	n_s [cm^{-3}]	B_0	Bemerkung
A	500	0,986	maritimer Typ
B	500	0,215	maritimer Typ gemischt mit Saharastaub
C	20000	0,755	industrieller Typ
D	2500	0,301	Hintergrund-Typ

Tabelle 6.3: Kenndaten (Anzahlkonzentration n_s und Aktivierungsparameter B_0 für verschiedene Aerosoltypen nach Hänel [1987b])

Der während LACE 98 beobachtete Wertebereich entspricht am ehesten den Typen „C“ und „D“, was einem industriell überprägten Hintergrundaerosoltyp entspricht. Klassisch maritime Typen sind hingegen in weniger als 10% der Fälle während LACE 98 zu beobachten. (vgl. hierzu auch Abbildung 6.5)

Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen

Bei der Anzahlkonzentration n_{sg} der wachsenden Wolkentropfen zeigt sich ebenfalls (wie im Falle der maximalen Übersättigung) in nullter Näherung eine einem Potenzgesetz folgende Zunahme des Medianwerts mit der Vertikalwindgeschwindigkeit w . Der Median von n_{sg} nimmt von 200 cm^{-3} bei Nebel ($w=3,6 \text{ cm s}^{-1}$) auf 3690 cm^{-3} in Gewitterwolken ($w=30 \text{ m s}^{-1}$) um mehr als einen Faktor 18 zu (vgl. Abbildung 6.5). Der Quotient zwischen dem 90% und dem 10%-Quantil nimmt im Gegensatz zu dem schon für s_m berechneten Verhältnis zu höheren Vertikalwindgeschwindigkeiten von einem Faktor 2 auf den Faktor 3 zu. Das bedeutet, dass 80% aller Werte für den LACE 98 -Datensatz bei gegebener Vertikalwindgeschwindigkeit innerhalb dieses Faktors 2-3 liegen. Vergleicht man wiederum den während LACE 98 beobachteten Wertebereich von n_{sg} mit den Ergebnissen der einzelnen Aerosoltypen von Hänel [1987b], so zeigt sich in 90% aller Fälle eine höhere Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen bei Vertikalwindgeschwindigkeiten, wie sie im Nebel vorherrschen. Im Vergleich zum Median entspricht dies einer um ca. 30% höheren Anzahlkonzentration. Dieser Unterschied ist im Vergleich zu der im „Nebel“ beobachteten Variabilität von einem Faktor 2 (90/10 Quantilsabstand) nicht sonderlich hoch.

6.2.3 Fehler / Sensitivitätsanalyse

Die Abbildungen 6.6(a) und 6.6(b) auf Seite 127 zeigen jeweils eine statistische Analyse des Gesamtmodellfehlers aller Modellläufe zur Berechnung der maximalen Übersättigung und der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen für verschiedene Vertikalwindgeschwindigkeiten. Eingetragen sind die Quantile des Gesamtfehlers in 10% Abstand. Als Datenbasis dienen für diese Analyse wiederum alle Modellergebnisse für den Zeitraum von LACE 98.

Maximale Übersättigung in Wolken

Der Gesamtfehler der Modellrechnungen bzgl. der maximalen Übersättigung nimmt mit einem Medianwert von rund 40% bei Nebel ($w \simeq 3\text{-}4 \text{ cm s}^{-1}$) stetig mit zunehmender Vertikalwindgeschwindigkeit auf einen Medianwert des Fehlers von weniger als 10% ab. Dominiert wird der Gesamtfehler durch Fehler, die im Rahmen der Radiuskorrektur der Größenverteilung – vgl. Anhang B.1 auf Seite 201 – ihre Ursache finden. Fehler, bedingt durch Unsicherheiten: (a) des Krümmungsterms A_0 mit (3–5%), (b) des Aktivierungsparameters B_0 mit (0,5–2%), (c) der Umgebungstemperatur T mit (0,5–2%) und (d) der Größenverteilungsmessung mit (3–4%), tragen zum Gesamtfehler signifikant nur bei hohen Vertikalwindgeschwindigkeiten bei. Der starke Anstieg des Maximalfehlers (100%-Quantil) zu

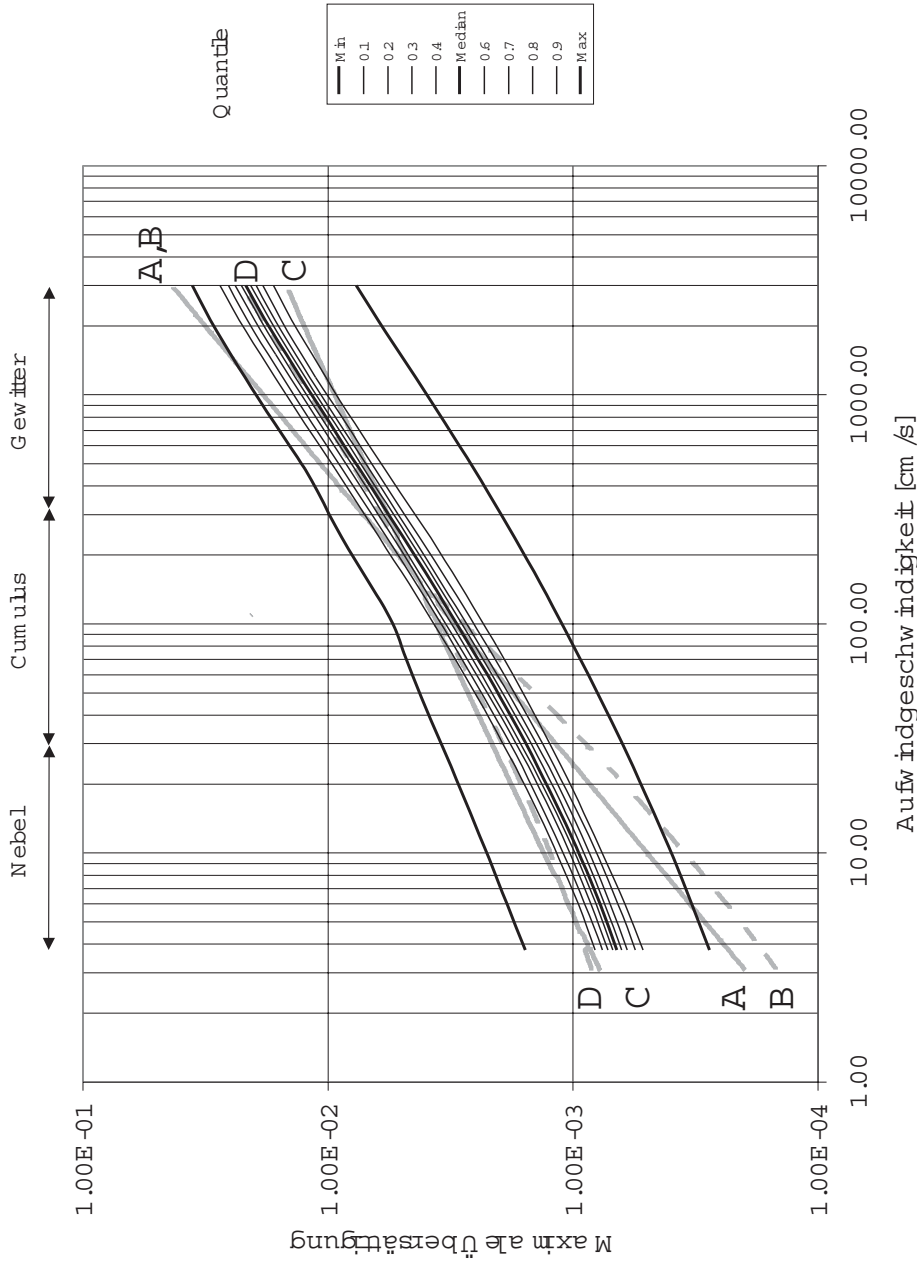


Abbildung 6.4: Quantile der maximalen Übersättigung der Wolkenluft als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit w auf Basis des kompletten LACE 98 -Datensatzes. Hervorgehoben sind die Minimum-, Median- und Maximum-Werte. Der Gesamtfehler setzt sich zusammen aus den partiellen Fehlern, die aus Unsicherheiten bei folgenden Messwerten oder daraus abgeleiteten Größen resultieren: Krümmungsparameter A_0 , Aktivierungsparameter B_0 , Größenverteilungsmessung $dn/d \log(r)$ und der Radiuskorrektur (zusammenfassender Fehler aus Unsicherheiten des aerodynamischen Formfaktors κ_0 und der Dichte der trockenen Partikel ρ_0) resultierender Fehler. Hellgrau überlagert dargestellt sind die Ergebnisse von Hänel [1987b] für folgende Aerosoltypen: (A) maritim, (B) maritim + Saharastaub, (C) Industrie, (D) Hintergrundaerosol (vgl. auch Tabelle 6.3).

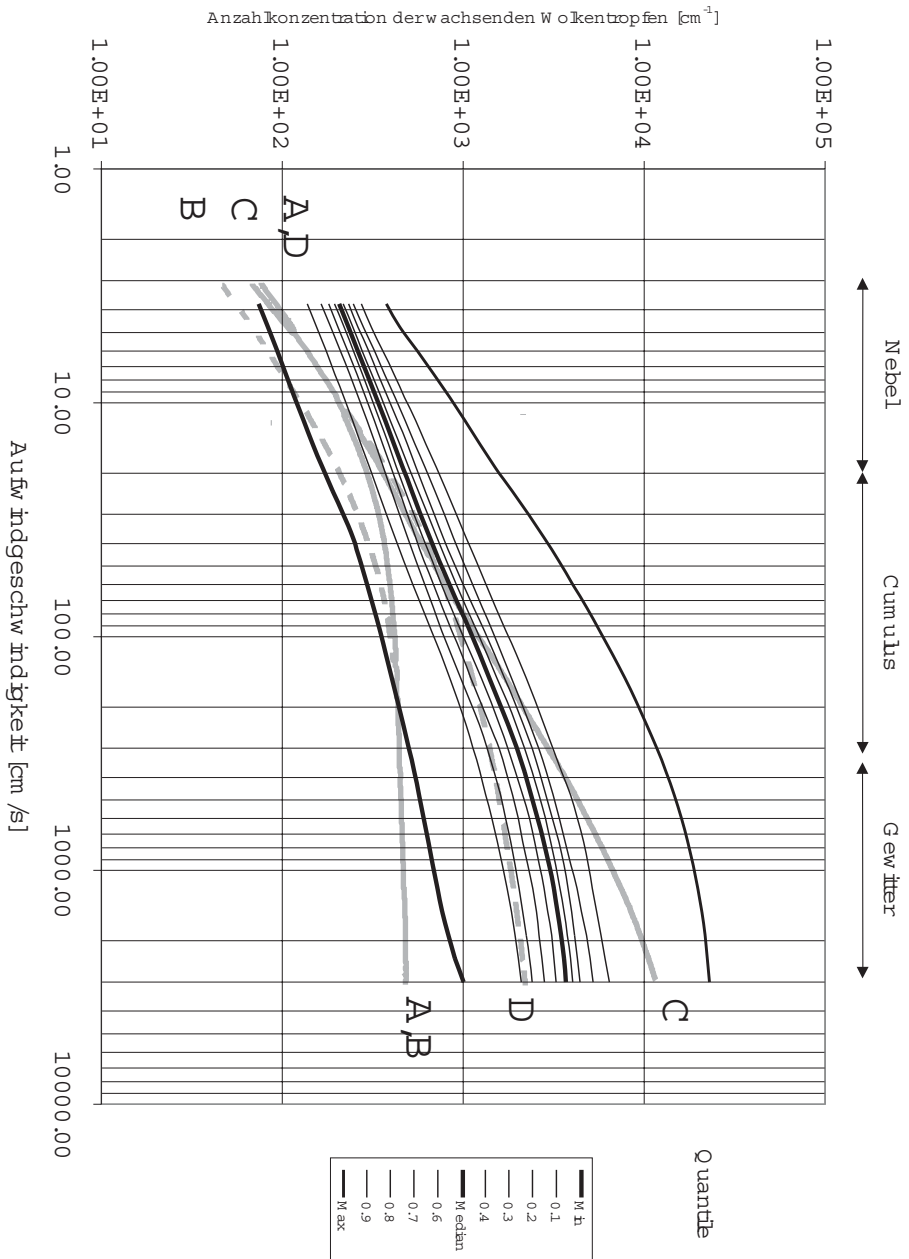


Abbildung 6.5: Quantile der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit w [cm⁻¹] auf Basis des kompletten LACE 98 - Datensatzes. Hervorgehoben sind die Minimum-, Median- und Maximum-Werte. Der Gesamtfehler setzt sich zusammen aus den partiellen Fehlern, die aus Unsicherheiten bei folgenden Messwerten oder daraus abgeleiteten Größen resultieren: Krümmungsparameter A_0 , Aktivierungsparameter B_0 , Größenverteilungsmessung $dn/d\log(r)$ und der Radiuskorrektur (zusammengefasster Fehler aus Unsicherheiten des aerodynamischen Formfaktors κ_0 und der Dichte der Trockenen Partikel ρ_{ho0}) resultierender Fehler. Hellgrau überlagert dargestellt sind die Ergebnisse von Hanel [1987b] für die Aerosoltypen: (A) maritim, (B) maritim + Saharastaub, (C) Industrie, (D) Hintergrundaerosol (vgl. auch Tabelle 6.3).

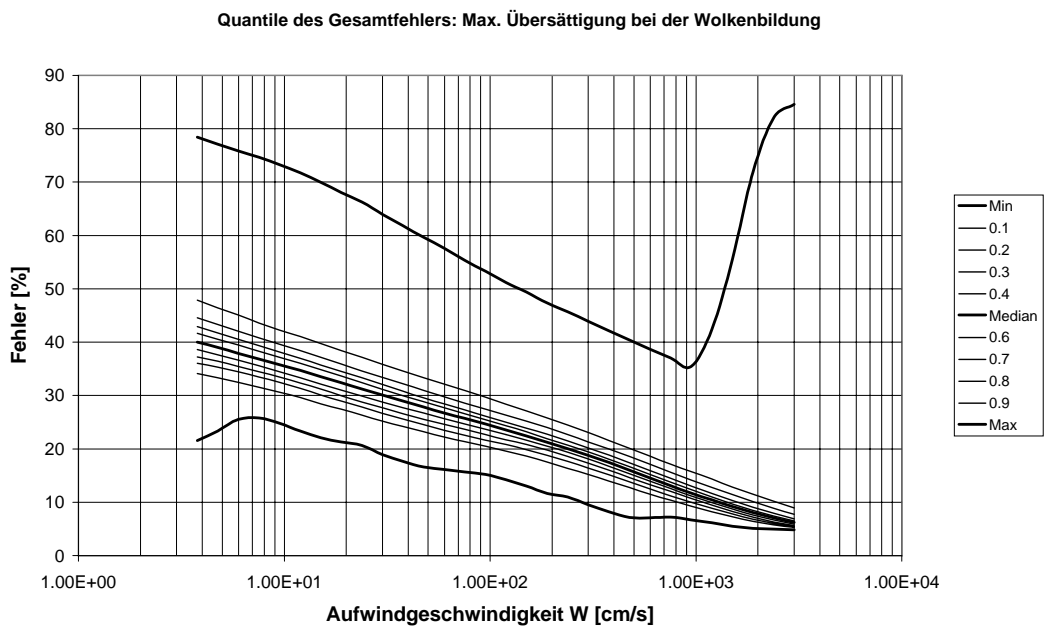
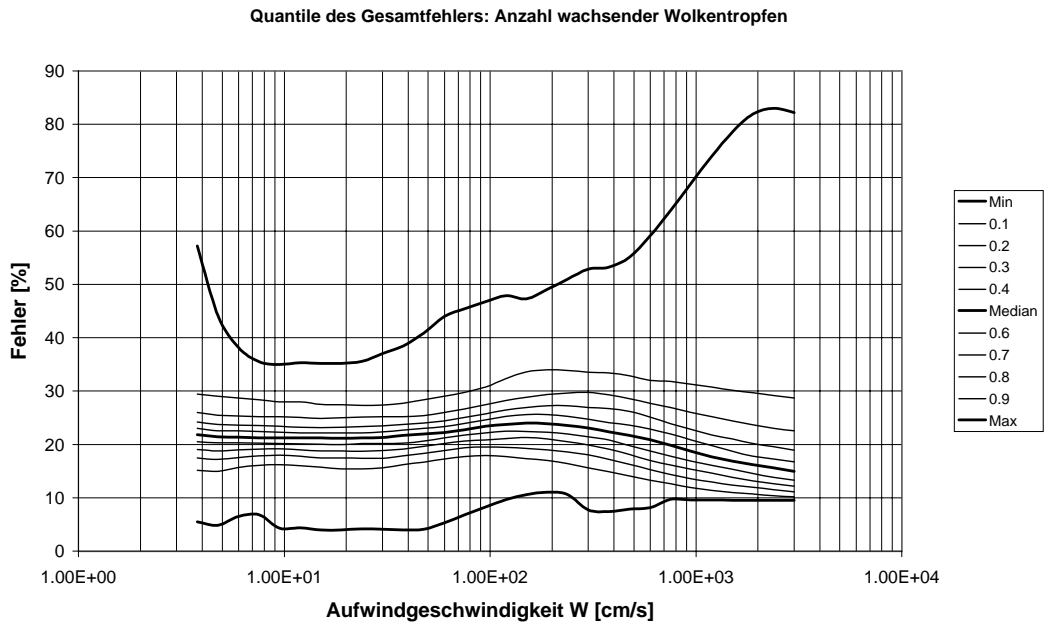


Abbildung 6.6: Quantile des Gesamtfehlers des Modells zur Berechnung der maximalen Übersättigung in der Wolkenluft und der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen.

hohen Vertikalwindgeschwindigkeiten wird von weniger als 1% aller Werte verursacht. Hierbei handelt es sich allerdings nicht um Ausreißer, die numerische Ursachen haben könnten. Vielmehr sind diese großen Fehler an bestimmte Formen der Größenverteilung gekoppelt, die im Rahmen der Radiuskorrektur zu den hohen Fehlern der Modellrechnungen führen. Näheres hierzu wird im Folgenden noch im Zusammenhang mit der Fehleranalyse der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen diskutiert.

Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen

Der Gesamtfehler des Modells zur Berechnung der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen ist mit einem Medianwert aller Modellrechnungen bzgl. LACE 98 von 20-25% praktisch konstant für verschiedene Vertikalwindgeschwindigkeiten w und fällt erst ab $w=8 \text{ ms}^{-1}$ auf etwa 15% ab. Dominiert wird der Gesamtfehler wiederum durch Fehler, die aus der Radiuskorrektur der Größenverteilung resultieren. Folgende Unsicherheiten verschiedener Eingangsgrößen des Modells tragen zum Gesamtfehler signifikant nur bei hohen Vertikalwindgeschwindigkeiten bei: (a) der Krümmungsparameter A_0 mit einem Fehler von (1–4%), (b) der Aktivierungsparameter B_0 mit einem Fehler von (0,5–2%), (c) die Umgebungstemperatur T mit einem Fehler von (0,5–2%) und (d) die Größenverteilungsmessung mit einem Fehler von (4–10%).

Betrachtet man den maximalen Fehler („Maximum“=100%-Quantil in Abbildung 6.6) aller Berechnungen von n_{sg} bzgl. LACE 98, so zeigt sich eine Zunahme dieses Maximalfehlers bei sehr kleinen als auch bei sehr großen Vertikalwindgeschwindigkeiten allerdings nur bei weniger als 1% aller Fälle. Die größten Fehler im Bereich kleiner Vertikalwindgeschwindigkeiten treten auf, wenn die Größenverteilungsmessung besonders viele große Partikel aufweist. Im Gegensatz hierzu sind große Fehler bei hohen Vertikalwindgeschwindigkeiten an das Vorkommen besonders vieler kleiner Partikel ($r_0 < 50 \text{ nm}$) gebunden. Dieses Verhalten stimmt auch mit unserem Bild des Aktivierungsprozesses von Partikeln (vgl. 6.2.1 auf Seite 119) überein. So wachsen im Nebel ($w < \sim 20 \text{ cm s}^{-1}$) hauptsächlich nur große Partikel (Wachstum im stabilen Radiusbereich der Partikel) und nur ein kleiner Teil der größeren Partikel wird aktiviert. Fehler bei der Radiuskonvertierung, die einer Stauchung und Verschiebung der Größenverteilung entspricht (vgl. B.1 auf Seite 201), wirken sich dann besonders stark sowohl auf die Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen als auch auf die maximale Übersättigung aus. Bei hohen Vertikalwindgeschwindigkeiten ($w > 10 \text{ ms}^{-1}$) bestimmt der Prozess der Aktivierung der kleinen Partikel ($r_0 < 50 \text{ nm}$) die Modellergebnisse. Der kritische Trockenradius der aktivierten Partikel verringert sich in diesem Bereich allerdings nur noch sehr langsam mit zunehmender Vertikalwindgeschwindigkeit, so dass ein Fehler bei der Radiuskorrektur wiederum große Veränderungen

gen in der Anzahlkonzentration der aktivierten Tropfen bedingt.

6.2.4 Ausblick

Die Ergebnisse der wolkenphysikalischen Charakterisierung des LACE 98 - Datensatzes im Rahmen dieser Studie, bilden den Ausgangspunkt für weitere, darauf aufbauende Studien. Hierzu könnten, neben den klimatologisch interessanten Aspekten des ersten und zweiten indirekten Effekts (vgl. Kapitel 1.3.1), auch die Niederschlagsbildung als Prozess betrachtet werden, der sehr stark an die mikro-physikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel gebunden ist.

Als eine mögliche Studie könnte man so z.B. quantitativ den Einfluss der Aerosolpartikel auf die Niederschlagsbildungsprozesse untersuchen. Die hierfür notwendigen Messungen von hochaufgelösten Präzisions-Wasserdampfprofilen (Ballonsonde: RS90) bzw. des Vertikalwindes („Windprofiler LAP 3000 RADIANT“ im Höhenbereich von 0,1– 3km und einer Vertikalauflösung von 100m) wurden während LACE 98 ebenfalls bestimmt. Die Ergebnisse dieser Berechnungen könnten anschließend mit tatsächlich beobachteten Niederschlagsmengen verglichen werden. Als Ausgangspunkt für eine solche Studie kann eine Abschätzung des mittleren Radius der Wolkentropfen stehen.

Verteilt man sämtliches kondensierte Wasser gleichmäßig auf alle wachsenden Wolkentropfen und berechnet deren Größe, so erhält man eine Abschätzung für den mittleren Radius r_g der wachsenden Wolkentropfen. Nach Hänel [1987b] gilt:

$$r_g = \sqrt[3]{\frac{3}{4\pi} \frac{\rho_{L0} \hat{m}_{kw}}{\rho_W n_{sg}}} \quad (6.10)$$

ρ_{L0} = Dichte der trockenen Luft

ρ_W = Dichte von Wasser

n_{sg} = Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen

\hat{m}_{kw} = Massenmischungsverhältnis des kondensierten Wassers

Der mittlere Radius repräsentiert den Radius der wachsenden Wolkentropfen recht gut. Modellrechnungen von Hänel [1987b] zeigen, dass der Unterschied zwischen r_g und dem Maximum der Größenverteilung der wachsenden Wolkentropfen in 80 % aller Fälle kleiner $\pm 5\%$ ist. Bei bekanntem Massenmischungsverhältnis \hat{m}_{kw} sind so auch mit Hilfe weiterer Modelle (z.B. für die Koagulation und die Koaleszenz) quantitativ Niederschlagsmengen berechenbar. Mit diesen Informationen sind dann auch Aussagen über die nasse Deposition – einer der wichtigsten Senkenprozesse für Aerosolpartikel– möglich.

Im nächsten Abschnitt 6.3, wird der Senkenprozess der trockenen Deposition von Aerosolpartikeln während LACE 98 charakterisiert. Hierzu wird die mittlere

massengewichtete Sedimentationsgeschwindigkeit und die mittlere Massenflussdichte der Partikel berechnet.

6.3 Sedimentation von Partikeln

Als letzte hier vorgestellte meteorologisch orientierte Anwendung wird die mittlere, massengewichtete Sedimentationsgeschwindigkeit \bar{u} der Partikel und daran gekoppelt die mittlere Flussdichte von Partikelmasse \mathcal{M}_\downarrow relativ zur Umgebungsluft während LACE 98 berechnet. (Im Folgenden wird für \bar{u} und \mathcal{M}_\downarrow verkürzend nur noch von der „Sedimentationsgeschwindigkeit“ bzw. der „Massenflussdichte“ gesprochen.)

Kennt man die vertikale Windgeschwindigkeit (w), so kann man aus \mathcal{M}_\downarrow die aktuelle, trockene Deposition durch Sedimentation von Partikeln abschätzen. Die Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikel ist stark abhängig von der Partikelgröße und somit direkt abhängig vom Wachstum der Partikel mit der relativen Luftfeuchte. Der modulare Aufbau des in den vorangehenden Kapiteln schon vorgestellten Gleichgewichtsmodells des Wachstums der Partikel mit der rel. Feuchte und die damit verbundene Datenaufbereitung der direkten Messgrößen während LACE 98, erlaubt auch die Verwendung dieses Programmmoduls bei der Berechnung der Sedimentationsgeschwindigkeit. Wie schon bei allen bisher vorgestellten Auswertemodellen gehen praktisch nur direkt gemessene bzw. aus Messgrößen abgeleitete Größen in das Auswertemodell ein. Als nicht direkt gemessen oder abgeleitete Größen werden Annahmen aus der Literatur für den aerodynamischen Formfaktor und die Dichte der trockenen Partikel verwendet.

Zunächst werden im Abschnitt 6.3.1 die für die Berechnung notwendigen theoretischen Grundlagen bereitgestellt. Anschließend wird im Abschnitt 6.3.2 eine Sensitivitätsanalyse bzgl. aller ins Auswertemodell eingehenden Einflussgrößen vorgestellt. Die Diskussion der erzielten Ergebnisse im Abschnitt 6.3.3 schließt dieses Unterkapitel ab.

6.3.1 Theorie

Partikel werden im Schwerfeld der Erde beschleunigt. Der Beschleunigung der Erde wirkt die am Partikel ansetzende Reibungskraft entgegen, die sich mit zunehmender Relativbewegung $\Delta\vec{v}$ zur umgebenden Luft verstärkt, bis sie schließlich die Erdbeschleunigung vollständig kompensiert. Im Gleichgewichtszustand bewegt sich das Partikel unbeschleunigt, d.h. mit konstanter Geschwindigkeit relativ zur umgebenden Luft. Die vertikale Komponente dieser Geschwindigkeit nennt man die Sedimentationsgeschwindigkeit u . Ein Maß dafür, wie schnell sich die tatsächliche Geschwindigkeit des Partikels der Geschwindigkeit im Gleich-

gewicht (im Sinne einer „Endgeschwindigkeit“) nähert, ist mit der hydrodynamischen Relaxationszeit \mathcal{T}_D gegeben. Die Berechnung von \mathcal{T}_D und darauf aufbauend die Berechnung von \bar{u} und \mathcal{M}_\perp wird im Folgenden vorgestellt.

Bewegungsgleichung eines Partikels im Schwerfeld der Erde

Die Bewegungsgleichung eines ungeladenen Partikels mit konstanter Masse M nimmt folgende Gestalt an.

$$M \frac{d\vec{v}}{dt} = - \overbrace{\frac{\vec{v} - \vec{v}_a}{\mathcal{T}_D}}^{\Delta\vec{v}} - (M - M_l)g\vec{e}_z \quad (6.11)$$

M Masse des Partikels

M_l Masse der Luft, die vom Partikel verdrängt wird

\vec{v} Vektor der Partikelgeschwindigkeit

\vec{v}_a Vektor der Windgeschwindigkeit

\vec{e}_z Einheitsvektor in vertikaler Richtung

t Zeitvariable

g Erdbeschleunigung

Der erste Term von Gleichung 6.11 beschreibt die Reibungskraft, die entgegen der Relativbewegung zwischen Partikel und Luft gerichtet ist. Der zweite Term beschreibt die am Partikel ansetzende Differenz von Auftriebs- und Gravitationskraft. Die hydrodynamische Relaxationszeit \mathcal{T}_D beschreibt anschaulich gesprochen, wie schnell ein Partikel mit der Relativgeschwindigkeit $\Delta\vec{v}$ durch die Reibungskraft abgebremst wird. Wirken außer der Reibungskraft keine weiteren Beschleunigungskräfte, so hat ein Partikel, das sich relativ zu seinem Umgebungsmedium bewegt, nach der Zeit t nur noch eine um den Faktor $\exp(-t/\mathcal{T}_D)$ geringere Geschwindigkeit. Bei $t = 3\mathcal{T}_D$ sind das nur noch rund 5% seiner ursprünglichen Geschwindigkeit gegenüber dem Medium. Es gilt: (vgl. hierzu Tabelle 6.4)

$$\mathcal{T}_D \stackrel{\text{Gl.B.4}}{=} \frac{2r_0^2 \rho_{Pf} (1 + K_n [A + Q \exp(-B/K_n)])}{9\kappa_f \eta_L (1 + \beta R_e^\gamma) (1 + M_a/2)} \quad (6.12)$$

Unter Vernachlässigung der Mach-Korrektur ($u \ll c_a$) und der Verwendung der Näherungsfunktion für die Dichte des feuchten Partikels (vgl. Herleitung B.1.2 auf Seite 203) folgt als vereinfachte Gleichung: (vgl. hierzu Tabelle

Zu Gleichung 6.12 vgl. Hänel [1977]	
$R_e = \frac{2r\rho_{L0} \vec{\Delta v} }{\eta_{0l}}$	Reynoldszahl der Relativbewegung zwischen Teilchen und Luft
$M_a = \vec{\Delta v} / c_a$	Mach'sche Zahl der Relativbewegung; c_a Schallgeschwindigkeit
$K_n = \lambda_l / r$	Knudenzahl des Teilchens
$A \simeq 5/4$	Oberflächenparameter der Partikel:
$Q \simeq 1/2$	
$B \simeq 1$	
$\beta \simeq 0,13$	
$\gamma \simeq 0,85$	

Tabelle 6.4:

6.5)

$$\mathcal{T}_D = \frac{2r_0^2 \rho_{Pf} \left(1 + \frac{\lambda_{0l} r_0}{r_0 r} \left(\frac{5}{4} + \frac{\exp\left(\frac{-r_0}{\lambda_{0l} r_0}\right)}{2} \right) \right)}{9\kappa_f \eta_{0L} \left(1 + 0,13 \left(\frac{2r_0 \rho_{L0}}{\eta_{0L}} |\vec{\Delta v}| \frac{r}{r_0} \right)^{0,85} \right)} \quad (6.13)$$

Für den aerodynamischen Formfaktor κ_f wird die in Tabelle 6.5 angegebene Näherungsfunktion in Abhängigkeit vom aktuellen Wachstumsfaktor $\frac{r}{r_0}$ der Partikel verwendet.

Sedimentationsgeschwindigkeit

Die Sedimentationsgeschwindigkeit als Vertikalkomponente der Endgeschwindigkeit des Partikels ($\vec{v}_\infty = \lim_{t \rightarrow \infty} \vec{v}(t)$) ist folgendermaßen definiert: $u = \vec{e}_z \cdot \vec{v}_\infty$. Im Gleichgewichtszustand gilt dann $\frac{d\vec{v}}{dt} \equiv 0$. Somit folgt mit $|\vec{\Delta v}| = u$ aus der Bewegungsgleichung 6.11:

$$u = \tau_D(u) g \left(1 - \frac{\rho_L 0}{\rho_{Pf}} \right); \quad (6.14)$$

Gleichung 6.14 ist implizit bzgl. u und muss numerisch gelöst werden. Hiefür wurde das Verfahren der Sukzessiven-Approximation verwendet.

Zur Berechnung einer bzgl. der trockenen Partikelsubstanz massengewichteten⁵, mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit \bar{u} wird nun das Auswertemodell

⁵Meteorologisch sinnvoll zur Abschätzung der trockenen Deposition ist nur ein massengewichtetes Mittel der Sedimentationsgeschwindigkeit

Zu Gleichung 6.13	
$\rho_W = 1000$	Dichte Wasser [kg/m ³]
$\rho_0 = 1930$	Dichte des trockenen Teilchens [kg/m ³]
$\rho_{Pf} = \left(\rho_W \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 + \frac{\rho_0 - \rho_W}{\frac{r}{r_0}} \right)$	Dichte des feuchten Teilchens [kg/m ³] (s. Anhang B.1.2 auf Seite 203)
$\eta_{0L} = 1,4943 \times 10^{-6} \frac{T^{3/2}}{T+118,8}$	Dynamische Scherviskosität trockener Luft [kg/m/s]
$\rho_{L0} = \frac{p}{R_i T}$	Dichte der trockenen Luft [kg/m ³]
$\lambda_{0l} = 2,3325 \times 10^{-7} * T / p$	Mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle [m]
$\kappa_f = \begin{cases} 1 & \text{für } \frac{r}{r_0} < \sqrt[3]{2}, \\ \kappa_0 - (\kappa_0 - 1) \left(\left(\frac{r}{r_0} \right)^3 - 1 \right) & \text{für } \frac{r}{r_0} \geq \sqrt[3]{2} \end{cases}$	
Näherungsfunktion des aerodynamischen Formfaktors κ_f als Funktion des Wachstumsfaktors des Partikels	

Tabelle 6.5:

zur Berechnung der Sedimentationsgeschwindigkeit in das schon beschriebene Wachstumsmodell (vgl. Abschnitt 5.1.1 auf Seite 81) integriert. Für jede gemessene Größenklasse i wird zunächst der Wachstumsfaktor berechnet und anschließend die Sedimentationsgeschwindigkeit u bestimmt. Das massengewichtete Mittel der Sedimentationsgeschwindigkeit \bar{u} bzgl. der trockenen Partikelsubstanz wird dann mit folgender Gleichung berechnet:

$$\bar{u} = \frac{1}{M_{p0}} \sum_{i=0}^N u(i) m_{pi} \quad (6.15)$$

$m_{pi} = \frac{4\pi}{3} r_i^3 \rho_0 n_{si}$ = Massekonzentration der trockenen Partikel der i 'ten Größenklasse

$M_{p0} = \sum_i m_{pi}$ = Gesamtmassekonzentration der trockenen Partikel

N = Anzahl der gemessenen Größenklassen

Ein kugelförmiges Partikel der Dichte 1 g cm^{-3} ($\kappa=1$, $\rho = 1 \text{ g cm}^{-3}$) mit einem Radius von $10 \mu\text{m}$ besitzt eine hydrodynamische Relaxationszeit von $T_D \simeq 1 \times 10^{-3} \text{ s}$ bei einem atmosphärischen Druck von $1013,25 \text{ hPa}$ und 20°C Temperatur der Umgebungsluft. Die Relaxationszeit verkürzt sich wesentlich für kleinere Partikel auf $T_D \simeq 1 \times 10^{-5} \text{ s}$ für Partikel mit $1 \mu\text{m}$ Radius. Wegen der

geringen hydrodynamischen Relaxationszeiten der Partikel ist die Teilchengeschwindigkeit in der Atmosphäre praktisch gleich der Endgeschwindigkeit nach einem hydrodynamischen Relaxationsprozess. Dies bedeutet, dass in horizontaler Richtung die Partikel mit der Horizontalkomponente des Windes transportiert werden. In vertikaler Richtung stellt sich die Sedimentationsgeschwindigkeit als Relativgeschwindigkeit zwischen Partikel und der Umgebungsluft ein [Hänel, 1994a].

Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse relativ zum umgebenden Medium der Luft

Aus der berechneten massegewichteten mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit \bar{u} (Gleichung 6.15) lässt sich nun die mittlere Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse relativ zur umgebenden Luft \mathcal{M}_\downarrow der Partikel durch Sedimentation berechnen. Es gilt:

$$\boxed{\mathcal{M}_\downarrow = \bar{u}M_{p0}} \quad (6.16)$$

Ist die Vertikalgeschwindigkeit der Luft gleich null, so geht \mathcal{M}_\downarrow direkt in die Massenbilanz als Senkenterm durch Sedimentation von Aerosolpartikeln ein. Bei gegebener Vertikalgeschwindigkeit w des Trägermediums Luft muss hierbei \mathcal{M}_\downarrow um den vertikalen Advektionsterm korrigiert werden. Es gilt für die effektive Massenflussdichte \mathcal{M}_\downarrow^* relativ zum Erdboden:

$$\mathcal{M}_\downarrow^* = \vec{v} \cdot \vec{e}_z M_{p0} = \mathcal{M}_\downarrow + wM_{p0} \quad (6.17)$$

6.3.2 Fehler / Sensitivitätsanalyse

In den Tabellen 6.7(a) und 6.7(b) auf Seite 135 sind, in Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchtigkeit, die prozentualen Modellfehler sowohl für den massegewichteten Mittelwert der Sedimentationsgeschwindigkeit $\Delta\bar{u}$ als auch für die Massenflussdichte $\Delta\mathcal{M}_\downarrow$ angegeben. In der ersten Spalte notiert ist der Gesamtfehler, der sich aus den in den folgenden Spalten angegebenen partiellen Fehlern der einzelnen Einflussgrößen (Aktivierungsparameter B_0 , Temperatur T , Dichte der trockenen Partikel ρ_0 , aerodynamischer Formfaktor κ_0 , relative Luftfeuchte f) zusammensetzt. Die angenommenen Unsicherheiten jeder einzelnen Einflussgröße sind in der untersten Zeile der Tabelle notiert. Zu beachten ist hier, dass κ_0 und ρ_0 im Gegensatz zu bisher diskutierten Modellsensitivitätsstudien nicht nur im Rahmen der Radiuskonvertierung der Größenverteilungsmessungen, sondern auch in die Auswertgleichungen selber einfließen.

Tabelle 6.6:

f	$\Delta\bar{u}[\%]$						
	Gesamtfehler	ΔB_0	ΔT	$\Delta\rho_0$	$\Delta\kappa_0$	Δf	$\Delta\frac{dn_s}{d\log r_0}$
0,20-0,30	22,87	0,31	0,00	17,18	15,08	0,06	0,00
0,30-0,40	22,69	0,64	0,00	17,04	14,96	0,13	0,00
0,40-0,50	21,79	1,13	0,00	16,29	14,42	0,26	0,00
0,50-0,60	21,52	1,91	0,00	16,02	14,22	0,52	0,00
0,60-0,70	21,18	3,31	0,00	15,56	13,89	1,15	0,00
0,70-0,80	20,48	2,44	0,00	15,08	13,53	1,24	0,00
0,80-0,90	20,56	2,49	0,00	15,08	13,56	2,05	0,00
0,90-0,975	25,43	3,72	0,00	13,37	12,32	15,69	0,00
Fehler der Eingangsgrößen:		10%	1,00%	10%	10%	1%	10%

(a) Sensitivitätsanalyse : Fehler des massegewichteten Mittelwerts der Sedimentationsgeschwindigkeit

f	$\Delta M_{p1}[\%]$						
	Gesamtfehler	ΔB_0	ΔT	$\Delta\rho_0$	$\Delta\kappa_0$	Δf	$\Delta\frac{dn_s}{d\log r_0}$
0,20-0,30	44,82	0,31	0,00	38,53	20,63	0,06	10,00
0,30-0,40	44,76	0,64	0,00	38,47	20,60	0,13	10,00
0,40-0,50	44,70	1,13	0,00	38,40	20,56	0,26	10,00
0,50-0,60	44,61	1,91	0,00	38,30	20,52	0,52	10,00
0,60-0,70	44,53	3,31	0,00	38,13	20,43	1,15	10,00
0,70-0,80	44,14	2,44	0,00	37,83	20,28	1,24	10,00
0,80-0,90	43,74	2,49	0,00	37,44	20,08	2,05	10,00
0,90-0,975	45,77	3,72	0,00	35,87	19,19	15,69	10,00
Fehler der Eingangsgrößen:		10%	1,00%	10%	10%	1%	10%

(b) Sensitivitätsanalyse : Fehler der Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse relativ zur Umgebungsluft

Tabelle 6.7: Mittelwerte des Modellfehlers von (a) $\Delta\bar{u}$ und (b) ΔM_{p1} auf Basis aller Modellrechnungen während LACE 98 in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f . In der ersten Spalte findet sich der prozentuale Gesamtfehler, der aus den in der untersten Tabellenzeile notierten Messfehlern bzw. Unsicherheiten der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der partiellen Fehler der einzelnen Einflussgrößen ist in den folgenden fünf Spalten angegeben. (B_0 Aktivierungsparameter, T Temperatur, ρ_0 κ_0 Dichte und aerodynamischer Formfaktor der trockenen Partikel, f relative Feuchtigkeit der Umgebungsluft.)

Mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit

Im Fall der mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit \bar{u} beträgt der Gesamtfehler zwischen 20 und 25%, wobei er zu Werten hoher relativer Luftfeuchte um 5% und zu geringen rel. Feuchten hin um 3% von einem minimalen Wert bei $f=0,70-0,80$ zunimmt. Dominiert wird der Gesamtfehler durch die partiellen Fehler der Dichte $\Delta\rho_0$ und des aerodynamischen Formfaktors $\Delta\kappa_0$ der trockenen Partikel. Der Anstieg des Gesamtfehlers zu hohen Feuchten hin ($f \geq 0,90$) wird durch den exponentiellen Anstieg des partiellen Fehlers Δf von ca. 2% bei relativen Feuchten zwischen 80–90% auf über 15% bei relativen Feuchten über 90% bedingt. Zu geringen Feuchten hin nimmt der Gesamtfehler, bedingt durch $\Delta\rho_0$ und ($\Delta\kappa_0$), zu, deren Einfluss mit zunehmender Feuchte von ca. 17% bzw. (15%) auf 13% bzw. (12%) abnimmt. Die Sensitivitätsrechnungen zeigen, dass sich die Fehler beim Ansatz von $\Delta\rho_0$ und $\Delta\kappa_0$ hauptsächlich über die Radiuskorrektur auswirken. Ein Fehler von 10% bei der Bestimmung des Aktivierungsparameters wirkt sich hingegen mit einem Fehler von maximal 4% (ΔB_0) erst bei hoher relativer Luftfeuchtigkeit ($f \geq 0,60$) signifikant auf das Endergebnis aus.

Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse relativ zur Umgebungsluft

Der Gesamtfehler bei der Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse ist mit ca. 44% im Mittel um den Faktor 2 größer als im Falle der mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit. Dominiert wird hierbei der Gesamtfehler durch Fehler, die im Rahmen der Radiuskorrektur entstehen ($\Delta\rho_0$ und $\Delta\kappa_0$). Da die Masse eines Partikels proportional zur dritten Potenz seines Radius ist, wirken sich Fehler bei der für das Gleichgewichts-Wachstumsmodell notwendigen Konvertierung des aerodynamischen Radius bzw. des Stokes-Radius in den Volumenäquivalentradius entsprechend stark aus. Bei der Integration über die Größenverteilung zur Berechnung der Trockenmasse der Partikel trägt im Gegensatz zur vorher betrachteten mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit \bar{u} auch der Fehler von $\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$ mit 10% zum Gesamtfehler bei.⁶

Wie schon in den vorher diskutierten Modellstudien zeigt sich auch hier als wichtiges Ergebnis dieser Sensitivitätsanalyse, dass eine genaue Kenntnis der Dichte und des aerodynamischen Formfaktors die Voraussetzung für gute Modellergebnisse ist.

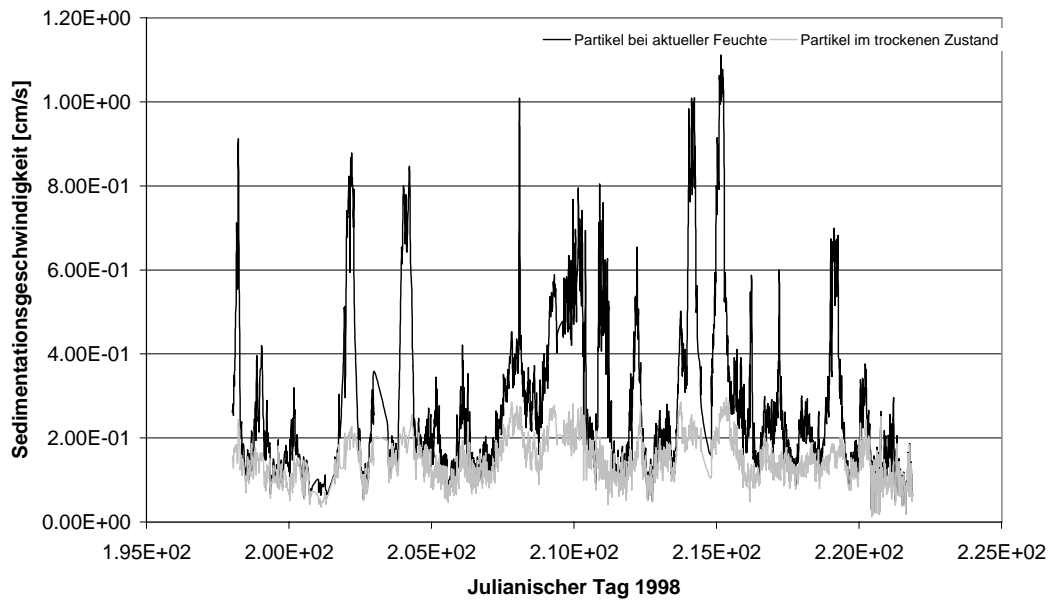
⁶Es wird angenommen, dass der prozentuale Fehler bei der Größenverteilungsmessung konstant für alle Partikelradien ist.

6.3.3 Ergebnisse

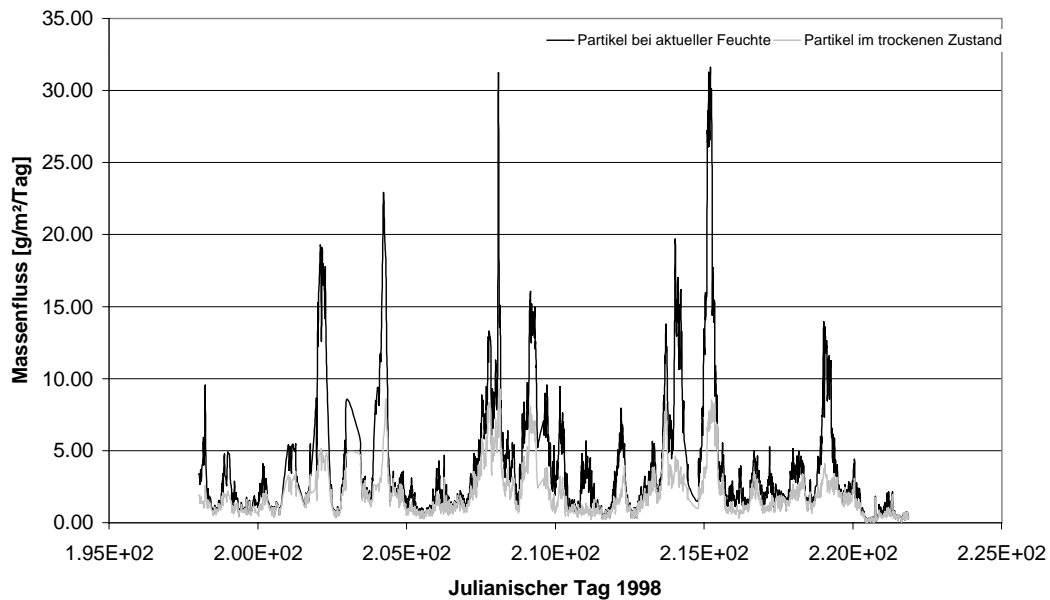
Abbildung 6.7 zeigt die aus dem LACE 98 –Datensatz berechneten Zeitreihen von \bar{u} und \mathcal{M}_\downarrow sowohl bei aktueller Umgebungsfeuchte als auch für Partikel im trockenen Zustand ($f = 0$). Im Verlauf der Zeitreihen zeigen sich deutliche zeitlich strukturierte Signaturen, die allerdings erst in Kapitel 8 im Rahmen einer Zeitreihenanalyse zusammen mit den Ergebnissen der anderen schon vorgestellten Modellrechnungen erörtert werden sollen. Eine Aufschlüsselung der verschiedenen Quantile des Mittelwerts und der Standardabweichung sind in Tabelle 6.8 auf Seite 139 sowohl für \bar{u} und \mathcal{M}_\downarrow bei aktueller Umgebungsfeuchte f und (als Referenzwerte) für $f = 0$ und $f = 0,90$ einzusehen. Für die Umgebungsfeuchte zeigt sich, dass die Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse in 70% aller Fälle kleiner als $4 \text{ g m}^{-2} \text{ Tag}^{-1}$ ist und die zugehörige Sedimentationsgeschwindigkeit unter $0,3 \text{ cm s}^{-1}$ liegt. Hohe Werte der Standardabweichung, insbesondere bei den Referenzfeuchten von $f=0$ und $f=0,90$, deuten auf eine hohe, vor allem durch die Partikeleigenschaften bedingte, Variabilität beider Modellgrößen hin. Eine Parametrisierung von \bar{u} und \mathcal{M}_\downarrow erscheint aus diesem Grund ausgeschlossen. Anders verhält sich dies bei der Feuchteabhängigkeit der beiden Größen. Eine Parametrisierung hierfür und für die Feuchteabhängigkeit des Extinktions- und Streukoeffizienten wird nun im Folgenden besprochen.

6.4 Näherungsfunktionen

In diesem Abschnitt werden Näherungsfunktionen vorgestellt, die die Feuchteabhängigkeit einer Auswahl der bisher vorgestellten Partikeleigenschaften beschreiben. Betrachtet man den Feuchtekorrekturfaktor der verschiedenen Partikeleigenschaften (in der hier verwendeten Nomenklatur immer mit $\xi(f)$ gekennzeichnet), so stellt man fest, dass die Punktwolke der Einzelwerte nicht kompakt um einen einfachen funktionellen Zusammenhang verteilt liegt. Dieses Verhalten ist verständlich, da verschiedene, zeitlich variable Einflussfaktoren das Größenwachstum und somit die Feuchteabhängigkeit der betrachteten Partikeleigenschaften beeinflussen. Neben der Form der Größenverteilung ist dies vor allem der Aktivierungsparameter B_0 , der den Einfluss der chemischen Zusammensetzung der Partikel auf das Größenwachstum mit der relativen Feuchte beschreibt. Ziel dieses Abschnittes ist es, eine mikrophysikalisch motivierte Näherungsfunktion für den Feuchtekorrekturfaktor der verschiedenen Partikeleigenschaften zu entwickeln, die neben der Feuchte auch den Aktivierungsparameter B_0 als Variable berücksichtigt.



(a) Zeitreihen der massengewichteten mittleren Sedimentationsgeschwindigkeiten während LACE 98 für Partikel bei aktueller Feuchte und Partikel im trockenen Zustand



(b) Zeitreihen des Flusses trockener Partikelmasse während LACE 98 für Partikel bei aktueller Feuchte und Partikel im trockenen Zustand

Abbildung 6.7:

Quantil	$\bar{u}(f=0,90)$ [cm s^{-1}]	$\mathcal{M}_1(f=0,9)$ [$\text{g m}^{-2} \text{Tag}^{-1}$]	$\bar{u}(f)$ [cm s^{-1}]	$\mathcal{M}_1(f)$ [$\text{g m}^{-2} \text{Tag}^{-1}$]	$\bar{u}(f=0)$ [cm s^{-1}]	$\mathcal{M}_1(f=0)$ [$\text{g m}^{-2} \text{Tag}^{-1}$]
Minimum	3,24E-02	4,45E-02	1,43E-02	1,96E-02	1,33E-02	1,83E-02
10%	1,91E-01	1,25E+00	1,05E-01	7,09E-01	8,60E-02	5,64E-01
20%	2,29E-01	1,77E+00	1,34E-01	1,10E+00	1,03E-01	7,86E-01
30%	2,60E-01	2,18E+00	1,57E-01	1,48E+00	1,17E-01	9,77E-01
40%	2,84E-01	2,71E+00	1,82E-01	1,89E+00	1,29E-01	1,21E+00
Median	3,09E-01	3,27E+00	2,11E-01	2,33E+00	1,40E-01	1,48E+00
60%	3,38E-01	4,01E+00	2,50E-01	2,95E+00	1,54E-01	1,85E+00
70%	3,73E-01	4,92E+00	2,99E-01	3,90E+00	1,70E-01	2,26E+00
80%	4,24E-01	6,26E+00	3,85E-01	5,31E+00	1,90E-01	2,84E+00
90%	4,90E-01	8,69E+00	5,49E-01	8,94E+00	2,21E-01	3,94E+00
Maximum	6,40E-01	2,01E+01	1,11E+00	3,23E+01	2,96E-01	9,45E+00
Mittelwert	3,25E-01	4,38E+00	2,74E-01	3,89E+00	1,47E-01	1,98E+00
stdabw	1,15E-01	3,60E+00	1,92E-01	4,50E+00	5,14E-02	1,63E+00

Tabelle 6.8: Quantile und statistische Lageparameter für die massengewichtete, mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit atmosphärischer Partikel \bar{u} [cm s^{-1}] und für die Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse \mathcal{M}_1 [$\text{g m}^{-2} \text{Tag}^{-1}$]

Näherungsfunktionen für die Feuchteabhängigkeit von \bar{u} und \mathcal{M}_\downarrow

Das Verhalten von $\bar{u}(f)$, normiert auf die mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit bei der Feuchte $f = 0$ ist in Abbildung 6.8 auf der nächsten Seite dargestellt. Aus der Proportionalität von $\bar{u} \propto \mathcal{M}_\downarrow$ (Gleichung 6.16) folgt, dass die im Folgenden vorgestellten Näherungsfunktionen für den Feuchtekorrekturfaktor der mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit ξ_{sed} auch für die Massenflussdichte gültig sind. Es gilt:

$$\xi_{\text{sed}} = \frac{\overline{u(f)}}{\overline{u(f=0)}} = \frac{M_{\downarrow(f)}}{M_{\downarrow(f=0)}} \quad (6.18)$$

In Abbildung 6.8 ist ein relativ kompakter funktionaler Zusammenhang von $\xi_{\text{sed}} - 1$ mit der relativen Luftfeuchte zu erkennen. Für hohe rel. Feuchten $f > \sim 0,7$ folgt $\xi_{\text{sed}}(f)$ einem Potenzgesetz (in der doppellogarithmischen Darstellung von Abbildung 6.8 als Gerade zu erkennen) hingegen für kleinere rel. Feuchten einem Exponentialgesetz. Eine rein mathematisch orientierte Näherungsfunktion muss dementsprechend abschnittsweise definiert werden. Die rein mathematisch orientierten Näherungsfunktionen sind in Abbildung 6.8 eingetragen. Das Bestimmtheitsmaß von 98% bzw. 97% ist für eine gute Näherungsfunktion allerdings nicht akzeptabel.

Die beobachtete Streuung der einzelnen Modellergebnisse um die Näherungsfunktionen ist – wie sich zeigen wird – hauptsächlich auf den Aktivierungsparameter B_0 der Partikel zurückzuführen. Im Folgenden soll eine mikrophysikalisch motivierte verbesserte Näherungsfunktion entwickelt werden, die ξ_{sed} als Funktion von B_0 und f parametrisiert. Es wird folgender Ansatz gewählt:

$$\bar{u} \stackrel{\text{Gl. 6.14}}{\propto} \mathcal{T}_D \quad (6.19)$$

$$\mathcal{T}_D \stackrel{\text{1. Näherung Gl. 6.12}}{\propto} r^2 \quad (6.20)$$

In erster Näherung folgt somit:

$$\xi_{\text{sed}} \cong \frac{\mathcal{T}_D(f)}{\mathcal{T}_D(f=0)} = \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \quad (6.21)$$

Nach der Kelvin-Köhler-Gleichung mit $c = \frac{A_0}{r_0 \hat{R}}$ in der Form:

$$\hat{R}^3 \equiv \left(\frac{r}{r_0} \right)^3 = 1 + \frac{B_0}{c - \ln f} \quad (6.22)$$

folgt unter der vereinfachenden Annahme $c = \text{const.}$ mit Gleichung 6.21 und dem Restglied \Re

$$\frac{B_0}{\xi_{\text{sed}}^{3/2} - 1} = (-\ln f) + c + \Re \quad (6.23)$$

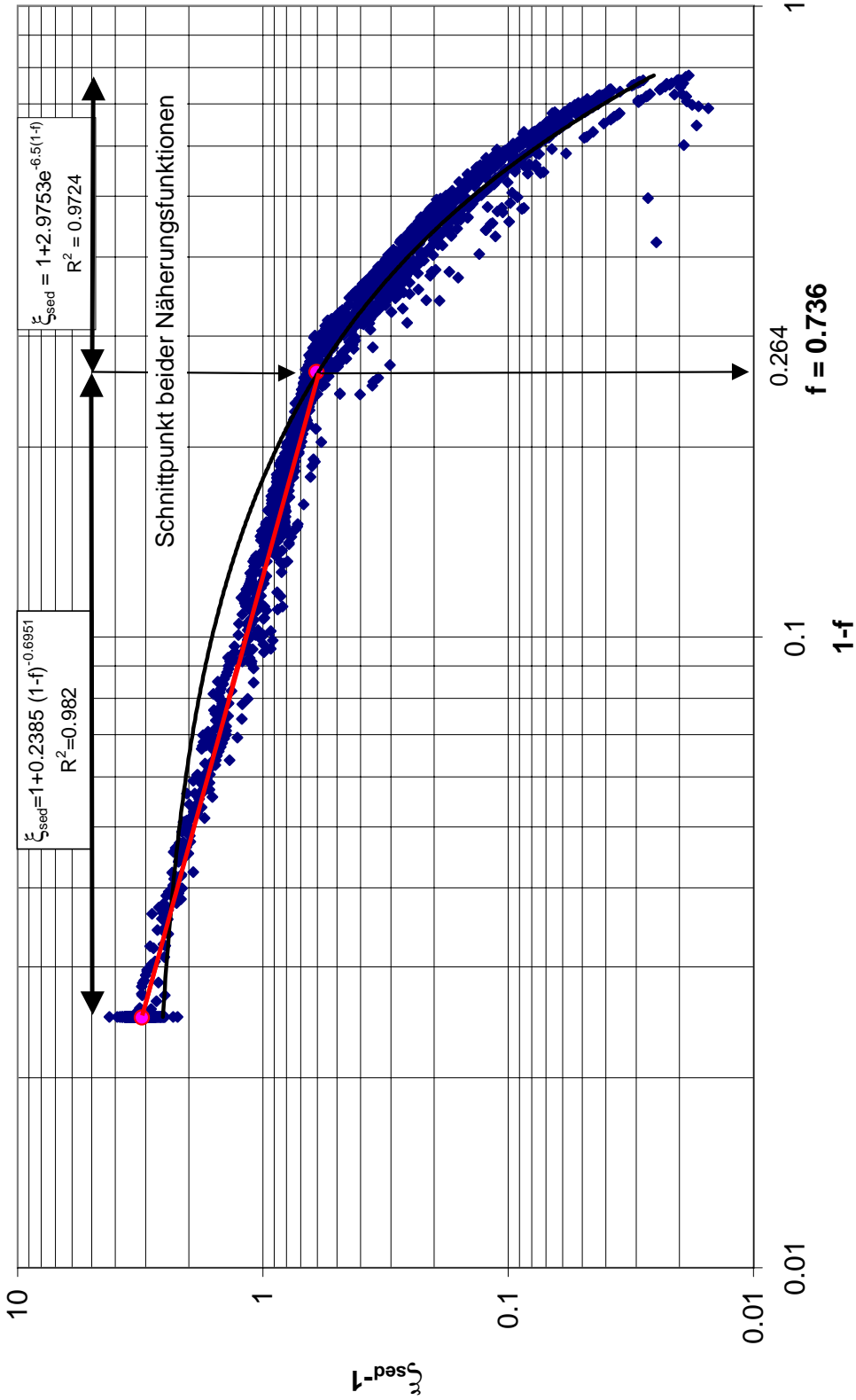


Abbildung 6.8: Modellergebnisse des Feuchtekorrekturfaktors der Sedimentationsgeschwindigkeit atmosphärischer Partikel ξ_{sed} als Funktion der relativen Luftfeuchtigkeit f während LACE 98. Zur besseren Darstellung wurde $\xi_{sed}-1$ über $1-f$ in doppellogarithmischer Skalierung aufgetragen. Zusätzlich eingetragen sind die Näherungsfunktionen der Regressionsanalyse für rel. Feuchten größer bzw. kleiner 73,6% (dem Schnittpunkt beider Näherungsfunktionen.)

Die rechte Seite von Gleichung 6.23 wird nun als Potenzreihe von $-\ln f$ angesetzt, deren Koeffizienten A_i mit Hilfe einer multiplen Regression aus den Modellergebnissen für ξ_{sed} bzgl. LACE 98 berechnet werden.

$$(-\ln f) + c + \mathfrak{R} = \sum_{i=0}^N A_i (-\ln f)^i \quad (6.24)$$

Mit $N=6$ nimmt die Näherungsfunktion folgende Gestalt an:⁷

Näherungsfunktion; für $0,975 \geq f \geq 0,20$

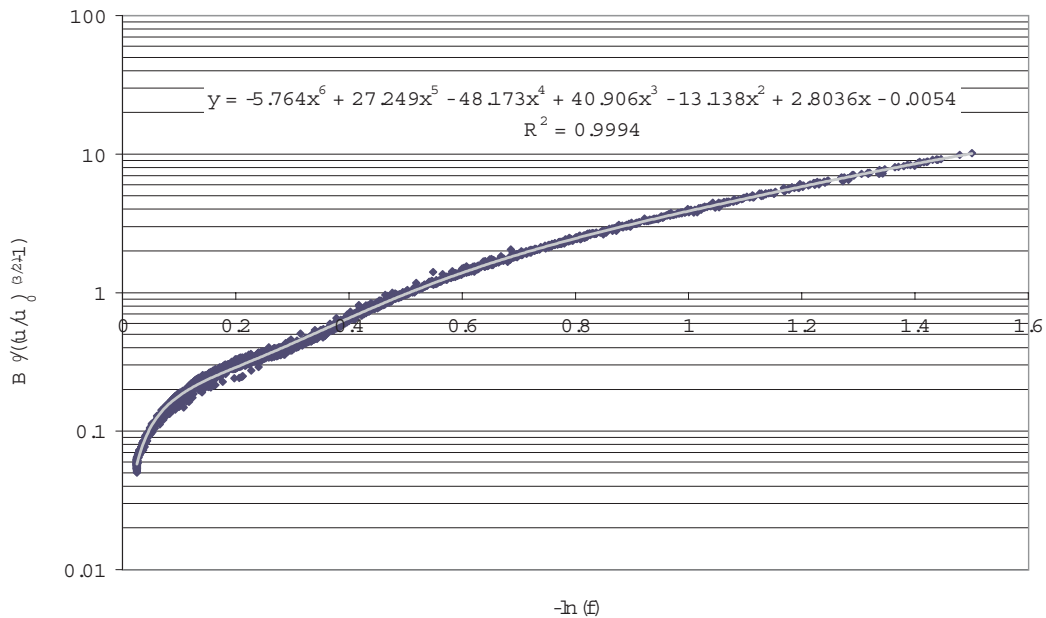
$$\xi_{\text{sed}}(B_0, f) = \sqrt[3]{\left(B_0 \left(\sum_{i=1}^7 -A_i \ln(f) \right)^{-1} + 1 \right)^2} \quad (6.25)$$

$A_1 = c$	$=$	$0,0054$	A_2	$=$	$2,8036$
A_3	$=$	$-13,138$	A_4	$=$	$40,906$
A_5	$=$	$-48,173$	A_6	$=$	$27,249$
A_7	$=$	$-5,764$			

Wie in Abbildung 6.9(a) zu erkennen, ist die Streuung der Datenpunkte um die Regressionskurve geringer (Bestimmtheitsmaß: $R^2=0,9994$) (d.h. die Verteilung ist kompakter, als die Verteilung der ursprünglichen Modellergebnisse um die rein mathematisch orientierten Näherungsfunktionen). Die Vermutung, dass die noch in Abbildung 6.8 beobachtete Varianz auf die unterschiedliche chemische Zusammensetzung und somit auf Variationen von B_0 der Partikel während LACE 98 zurückzuführen ist, konnte somit bestätigt werden. In Abbildung 6.9(b) sind zur Demonstration die Näherungsfunktionen für ξ_{sed} mit $B_0=0,25$ und $B_0=0,6$ eingezeichnet.

Die so entwickelte Näherungsfunktion basiert auf einer Näherungsfunktion für den Wachstumsfaktor $\frac{r}{r_0}$ ohne Berücksichtigung des sogenannten Krümmungseffektes ($c=\text{const.}$). Prinzipiell ist diese Art der Näherungsfunktion anwendbar auf alle Partikeleigenschaften die proportional zu $\left(\frac{r}{r_0}\right)^2$ sind. Dies trifft insbesondere auf die Feuchtekorrekturfaktoren (ξ_s) des Streu- und (ξ_e) des Extinktionskoeffizienten zu. Im Folgenden werden für beide Parameter analoge Näherungsfunktionen anhand des LACE 98 -Datensatzes bestimmt.

⁷Der angegebene Gültigkeitsbereich der Näherungsfunktion ist unbedingt einzuhalten, da die Koeffizienten der Potenzfunktion des Restglieds \mathfrak{R} nur in diesem Bereich gültig sind



(a) Regressionsanalyse

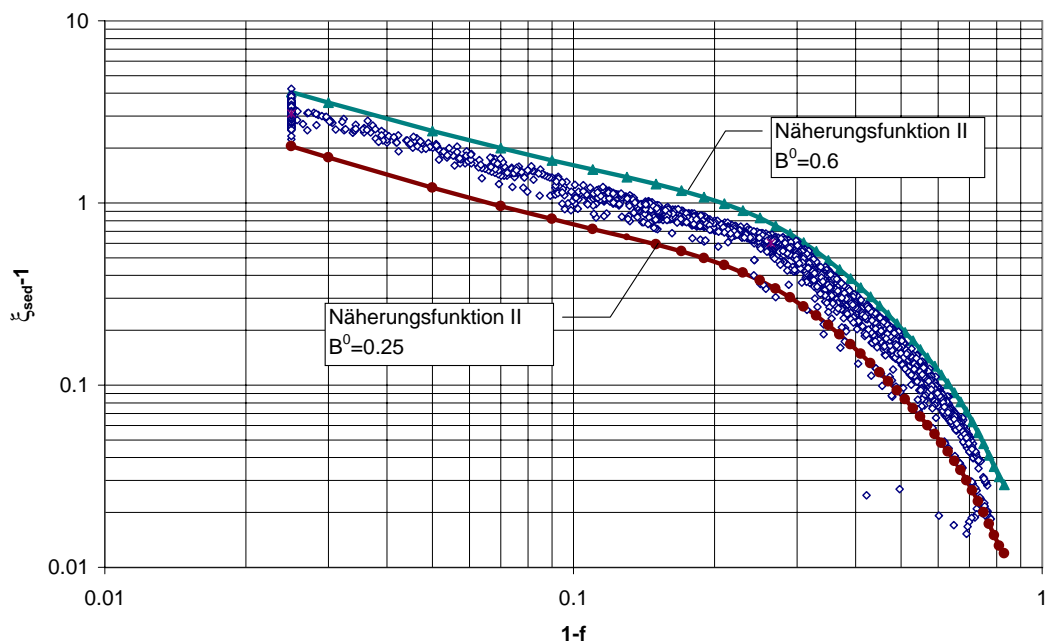
(b) Näherungsfunktionen für $B_0=0,25$ und $B_0=0,6$ im Vergleich zu den Modellergebnissen von ζ_{sed}

Abbildung 6.9: Näherungsfunktion II: Feuchtekorrekturfaktor der Sedimentationsgeschwindigkeit atmosphärischer Partikel als Funktion der rel. Luftfeuchte

Näherungsfunktion des Feuchtekorrekturfaktors ξ_s und ξ_e des Streu- bzw. des Extinktionskoeffizienten

Nach Gleichung 5.3 auf Seite 80 gilt für ein Partikel mit dem Radius r_0 im trockenen Zustand näherungsweise:

$$\xi_X \propto \left(\frac{r}{r_0}\right)^2 \text{ mit: } X \in \{s; e\} \quad (6.26)$$

Die Proportionalität ist nur näherungsweise gegeben, da der Wirkungsfaktor der Streuung und der der Extinktion selbst eine Funktion des Radius des Partikels ist. Insbesondere bewirkt die starke Abhängigkeit⁸ des Wirkungsfaktors der Absorption vom Radius des feuchten Partikels im verwendeten Kugelschalenmodell, dass ξ_a nicht proportional zum Wachstumsfaktor $\left(\frac{r}{r_0}\right)^2$ ist und somit nicht mit einer Näherungsfunktion des oben beschriebenen Typs parametrisiert werden kann.

Analog zu Gleichung 6.23 folgt unter der vereinfachenden Annahme $c = \text{const.}$ und dem Restglied \mathfrak{R} :

$$\frac{B_0}{\xi_X - 1} = (-\ln f) + c + \mathfrak{R} \quad (6.27)$$

Bei der Analyse der Daten zeigte sich, dass es günstiger ist, die rechte Seite von Gleichung 6.27 nicht als Reihe anzusetzen, sondern den Term $c + \mathfrak{R}$ wie folgt abzuschätzen: Zunächst wird der Logarithmus von 6.27 gebildet. Es folgt:

$$\ln\left(\frac{B_0}{\xi_X - 1}\right) = \ln((-\ln f) + c + \mathfrak{R}) \quad (6.28)$$

für die Rechte Seite von 6.28 wird nun der lineare Ansatz $A_1 x + A_2$ mit $x = \ln(-\ln(f))$ gewählt. Aus diesem Ansatz folgt für das Restglied:

$$c + \mathfrak{R} = \exp(A_1 \ln(-\ln(f))) + A_2 \quad (6.29)$$

Die unbekannt Parameter A_1 und A_2 werden nun mit Hilfe einer linearen Regression aus allen für LACE 98 zur Verfügung stehenden Modellergebnissen für ξ_e und ξ_s bestimmt (vgl. hierzu Abbildung 6.10(a)).

Die Näherungsfunktion für die Feuchtekorrekturfaktoren ξ_e und ξ_s des Extinktions- bzw. des Streukoeffizienten hat folgende Gestalt.

⁸Im verwendeten Modellaerosolpartikel (Kugelschalenmodell) wird Strahlung mit der Wellenlänge $\lambda = 700\text{nm}$ hauptsächlich im unlöslichen Kern absorbiert. Somit muss der zugehörige Wirkungsfaktor mit zunehmendem Wachstumsfaktor $\frac{r}{r_0}$ der Partikel abnehmen.

Näherungsfunktion; für $0,975 \geq f \geq 0,20$

$$\xi_{X=\{e,s\}}(B_0, f) = \sqrt[3]{\left(\frac{B_0}{\exp(A_1 \ln(-\ln f) + A_2)} + 1\right)^2} \quad (6.30)$$

ξ_e	ξ_s
$A_1 = 1,5573 \pm 0,0024$	$A_1 = 1,6037 \pm 0,002$
$A_2 = 0,9008 \pm 0,004$	$A_2 = 0,6933 \pm 0,005$
$R^2 = 0,99$	$R^2 = 0,99$

R^2 =Bestimmtheitsmaß

Wie in Abbildung 6.10(a) zu erkennen, ist die Korrelation kompakter als die ursprünglichen Modellergebnisse (vgl. Abbildung 6.10(b)) als Funktion der rel. Feuchte (Bestimmtheitsmaß: $R^2=0,99$). Die Vermutung, dass die noch in Abbildung 6.8 beobachtete Varianz auf die unterschiedliche chemische Zusammensetzung und somit auf Variationen von B_0 der Partikel während LACE 98 zurückzuführen ist, konnte somit auch für ξ_e und ξ_s bestätigt werden. In Abbildung 6.10(b) sind hierzu zu Demonstrationszwecken die Näherungsfunktionen für ξ_e mit $B_0=0,25$ und $B_0=0,6$ eingezeichnet.

6.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden verschiedene, für die Meteorologie und Klimatologie wichtige Größen, als Funktion der Partikeleigenschaften und der relativen Feuchte, mit Hilfe von Auswertemodellen aus Messungen während LACE 98 berechnet. Hierzu wurde das Programmmodul zur Berechnung des Wachstums der Partikel als Funktion der rel. Feuchte in die aus der Literatur bekannten Auswertemodelle integriert, das schon im Rahmen der indirekten Schließung vorgestellt wurde. Es liegen somit Zeitreihen dieser Größen mit einer zeitlichen Auflösung von 15 Minuten für den gesamten Zeitraum des Feldexperiments von ca. vier Wochen vor. Die wichtigsten Ergebnisse sollen an dieser Stelle nochmals genannt und für die einzelnen Unterkapitel zusammenfassend dargestellt werden.

Energiebilanz der Atmosphäre

- Es wurde die Volumenabsorption solarer Strahlung aus Messungen des Strahlungsangebotes und des Absorptionskoeffizienten durch atmosphärische Partikel bei Umgebungsfeuchte in Bodennähe auf der Grundlage von

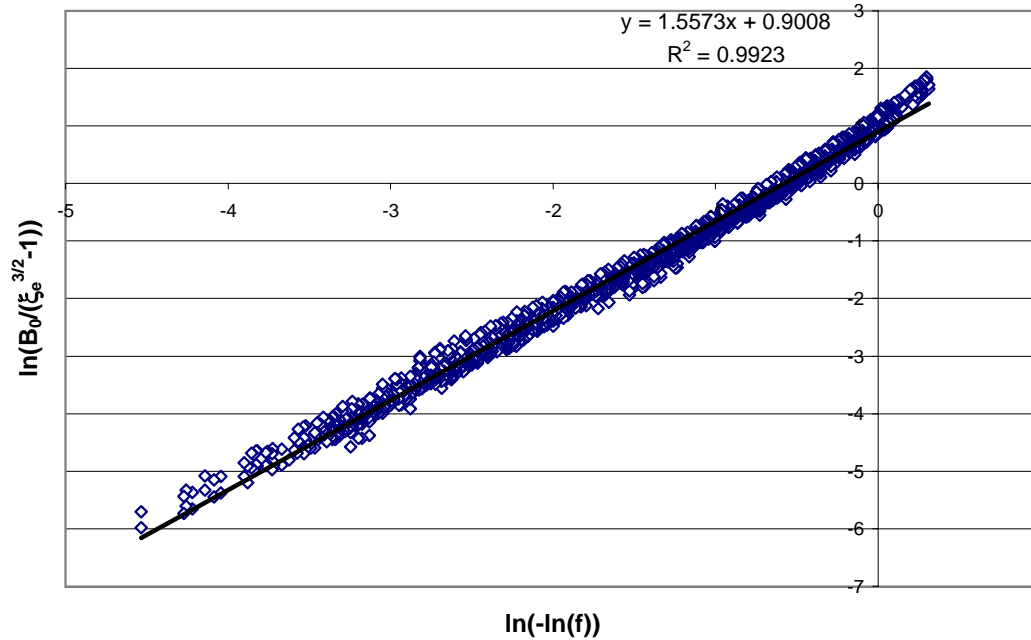
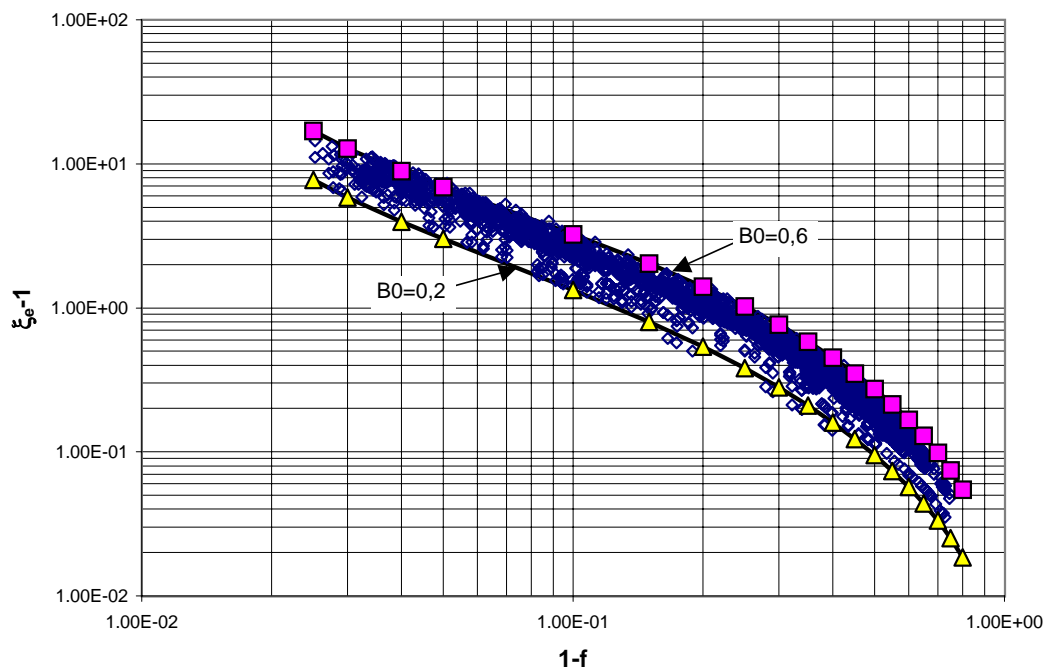
(a) Regressionsanalyse zur Bestimmung der Koeffizienten A_1 und A_2 der Näherungsfunktion(b) Näherungsfunktionen für $B_0=0,2$ und $B_0=0,6$ im Vergleich zu den Modellergebnissen von ξ_e

Abbildung 6.10: Näherungsfunktion: Feuchtekorrekturfaktor der Extinktion atmosphärischer Partikel als Funktion der rel. Luftfeuchte. Die beiden eingezeichneten Näherungsfunktionen für $B_0 = 0,25$ und $B_0 = 0,6$ begrenzen die Punktwolke der Modellergebnisse

Messungen für die Messkampagne LACE 98 berechnet. Ferner wurde hierauf aufbauend die Erwärmungsrate der Luft und die daraus resultierende tägliche Erwärmung berechnet und charakterisiert.

- Die während LACE 98 beobachteten Werte der täglichen Erwärmung sind vergleichbar mit Messungen früherer Kampagnen [*Hänel & Kastner, 2000*] auf dem Kleinen Feldberg.
- Der von *Hänel & Kastner [2000]* gefundene lineare Zusammenhang zwischen der täglichen Erwärmung und der maximalen Erwärmungsrate konnte bestätigt werden.
- Eine Sensitivitätsanalyse des Auswertemodells wurde vorgestellt. Der beobachtete Gesamtfehler des Auswertemodells für die Erwärmungsrate beträgt zwischen 6 und 22%.

Wolkenphysik

- Die maximale Übersättigung der Wolkenluft während der Wolkenbildung und die Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen wurde mit Hilfe eines Auswertemodells nach *Hänel [1987b]* als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit berechnet. Der betrachtete Bereich reicht von Vertikalwindgeschwindigkeiten, wie sie typischerweise bei Nebel vorherrschen bis hin zu Vertikalwindgeschwindigkeiten, wie sie in Gewitterwolken existieren.
- Der während LACE 98 beobachtete Wertebereich der maximalen Übersättigung und der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen wurde statistisch charakterisiert und mit den Modellrechnungen von *Hänel [1987b]* für die Aerosoltypen A–D verglichen. In über 80 % der Fälle entspricht der während LACE 98 beobachtete Wertebereich den Typen C und D (industriell geprägter Typ und Hintergrund-Typ). Der Wertebereich, der mit den Typen „A“ (mariner Typ) und „B“ (mariner Typ mit Saharastaub) wird während LACE 98 in weniger als 10% aller Fälle beobachtet.
- Im Rahmen einer Sensitivitätsstudie der Auswertemodelle wurde der resultierende Fehler, der durch Unsicherheiten der einzelnen Einflussgrößen verursacht wird, betrachtet. Der resultierende Gesamtfehler des Modells im Falle der maximalen Übersättigung ist bei einem Medianwert von ca. 40% und bei für Nebel typischen Vertikalwindgeschwindigkeiten maximal. Er nimmt mit zunehmender Vertikalwindgeschwindigkeit auf Fehler kleiner 10% –bei Vertikalwindgeschwindigkeiten, die typisch für Gewitterwolken sind– ab. Der Medianwert des Gesamtfehlers der Anzahlkonzentration der

wachsenden Wolkentropfen ist mit 20-25% praktisch konstant für alle Vertikalwindgeschwindigkeiten.

- Es wurde ein Ausblick über eine mögliche Studie über ein Niederschlagsmengen-Schließungsexperiment auf der Basis der hier vorgestellten Methoden und Ergebnisse vorgestellt.

Sedimentation von Partikeln

- Die massengewichtete mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit und die damit verbundene Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse relativ zur Luft wurde für den Zeitraum von LACE 98 mit Hilfe eines Auswertemodells aus aktuellen Messwerten berechnet.
- Im Rahmen einer Sensitivitätsanalyse des Auswertemodells wurde der Gesamtfehler, der aus den Unsicherheiten der einzelnen Einflussgrößen resultiert, berechnet. In Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchte liegt der Gesamtfehler im Falle der Sedimentationsgeschwindigkeit bei 20–25% und im Falle der Massenflussdichte zwischen 42–45%. Dominiert wird der Gesamtfehler durch die partiellen Fehler, die aus den Unsicherheiten im Ansatz der Dichte und des aerodynamischen Formfaktors der trockenen Partikel resultieren.

Näherungsfunktionen

- In diesem Unterkapitel wurden physikalisch motivierte Näherungsfunktionen entwickelt, die den Feuchteeffekt auf die Sedimentationsgeschwindigkeit, die Massenflussdichte, den Extinktions- und den Streukoeffizienten als Funktion der Feuchte und den Einfluss der chemischen Zusammensetzung der Partikel in Form des Aktivierungsparameters beschreiben.
- Die hier vorgestellten Näherungsfunktionen erlauben die Berechnung des Feuchteeffektes der verschiedenen Zielgrößen ohne großen Rechenaufwand, so dass sie auch leicht in Klima- oder Wettervorhersagemodelle integriert werden können.
- Das Bestimmtheitsmaß $R^2 > 0,99$ aller Regressionsanalysen zur Bestimmung der Parameter der einzelnen Näherungsfunktionen bedeutet, dass über 99% der beobachteten Varianz während LACE 98 durch die Näherungsfunktionen erklärt werden kann.

Kapitel 7

Anwendung in Gesundheit und Medizin

Aerosolpartikel gelangen durch Inhalation in den menschlichen Atemtrakt und werden dort auch zum Teil deponiert. Der Mensch verfügt, genauso wie alle lungenatmenden Lebewesen auf der Welt auch, über einen effizienten Reinigungsmechanismus (Clearance), der Fremdstoffe wie z.B. Partikel oder auch Krankheitskeime aus dem Atemtrakt entfernt. Ohne diesen Reinigungsmechanismus würde ein Mensch nicht lange überleben können. Im Überblickskapitel 1.5 auf Seite 23 wurde schon gezeigt, dass eine Störung dieses Reinigungsmechanismus die Ursache für eine Vielzahl von Erkrankungen des Atemtraktes ist. Aber auch bei normaler Reinigungsfunktion können toxische Bestandteile der Partikel systemisch¹ wirksam werden und so die Gesundheit des Menschen bedrohen.

In diesem Kapitel sollen die ersten Ergebnisse einer Modellierung des Verhaltens von Aerosolpartikeln innerhalb des menschlichen Atemtraktes vorgestellt werden. Ziel ist es hierbei, exemplarisch für den LACE 98 -Zeitraum quantitative Aussagen über die systemisch wirksame Tagesdosis zu treffen, der ein Mensch durch die Inhalation von in der Umgebungsluft befindlichen Aerosolpartikeln ausgesetzt ist.

Zunächst wird im Abschnitt 7.1 ein kurzer Überblick über die anatomischen, physiologischen und morphologischen Grundlagen des Atemtraktes gegeben, die Voraussetzung für das Verständnis des hier verwendeten Modells sind. Das verwendete Modell und die daran vorgenommenen Verbesserungen, insbesondere der mikrophysikalischen Modellierung des Wachstums der Partikel innerhalb und außerhalb des Atemtraktes, werden im Anschluss daran kurz vorgestellt. Eine detaillierte Beschreibung des über 1800 Programmzeilen umfassenden Modells würde

¹**systemisch:** ein ganzes Organsystem (z.B. Blut, Muskulatur, ZNS)– den ganzen Organismus betreffend [Hildebrand, 1998]

den Rahmen dieser Arbeit sprengen. In Abschnitt 7.2 werden dann die erzielten Ergebnisse der aufgenommenen Tagesdosis und der mittleren Partikelbelastung der verschiedenen Regionen des Atemtraktes für verschiedene Probanden und verschiedene Tätigkeitsmuster vorgestellt.

7.1 Grundlagen

7.1.1 Der Atemtrakt : Anatomie, Physiologie und Morphologie

Die Darstellung der Anatomie, Physiologie und Morphologie des menschlichen Atemtraktes erfolgt an dieser Stelle nur insoweit, wie es für das Verständnis der Arbeit notwendig ist. Hierzu zählen eine Begriffserläuterung sowie ein Überblick über die wichtigsten Prozesse der Selbstreinigung des Atemtraktes. Für eine genaue Darstellung der physiologischen, anatomischen und mikrobiologischen Grundlagen sei auf die Fachliteratur verwiesen [Schettler & Greten, 1998; Grundmann, 1986; Renz-Polster & Braun, 1999; Thews et al., 1999; Netter, 1982].

Abbildung 7.1 auf der nächsten Seite zeigt den Aufbau des menschlichen Atemtraktes und die hier verwendete Einteilung des Atemtraktes in anatomische Regionen. Die anatomische Einteilung basiert sowohl auf funktionalen sowie auf zytologischen Kriterien der einzelnen Regionen. Der Vorteil einer kombinierten funktionellen–zytologischen Einteilung ist, dass innerhalb einer anatomischen Region ähnliche Bedingungen sowohl für die Deposition von Partikeln als auch für die Selbstreinigungsprozesse vorherrschen, so dass diese relativ leicht innerhalb eines Modells parametrisiert werden können. Unter ET_1 und ET_2 werden die extrathorakalen² Regionen der zuleitenden Atemwege unterschieden. Dabei umfasst ET_1 die vordere Nasenhöhle (cavum nasi) und ET_2 die Nasenmuscheln (Conchae nasales), und den Nasen-Rachenraum (Naso- /Oro-Pharynx) bis einschließlich des Kehlkopfes (Larynx). Von den zuleitenden Atemwegen gelangt die Atemluft durch die Trachea (Luftröhre) in die Lungen. Dort teilt sich die Trachea in die Stammbronchien (Hauptbronchien) der beiden Lungenflügel auf. Von diesen Stammbronchien zweigen nun kleinere Äste ab, die sich unter stetiger Abnahme ihres Lumens³ dichotom⁴ weiter aufteilen. Ab der vierten Teilungsgeneration⁵ spricht man von kleinen Bronchien, die weiter in die Bronchiolen und diese weiter in die Terminalbronchiolen übergehen. Der luftleitende Stammbronchus hat sich bis zu den Terminalbronchien rund 16 mal geteilt. Bis hierhin findet ei-

²**extrathorakal:** außerhalb des Thorax (= Brustraum) befindlich

³**Lumen:** lichte Weite röhrenförmiger Körper oder Hohlorgane [Hildebrand, 1998]

⁴**Dichotomie:** Teilung, bei der zwei gleiche Teile aus einem Teil hervorgehen [Hildebrand, 1998]

⁵**Teilungsgeneration:** Ordnung der dichotomen Teilungen des Stammbronchus

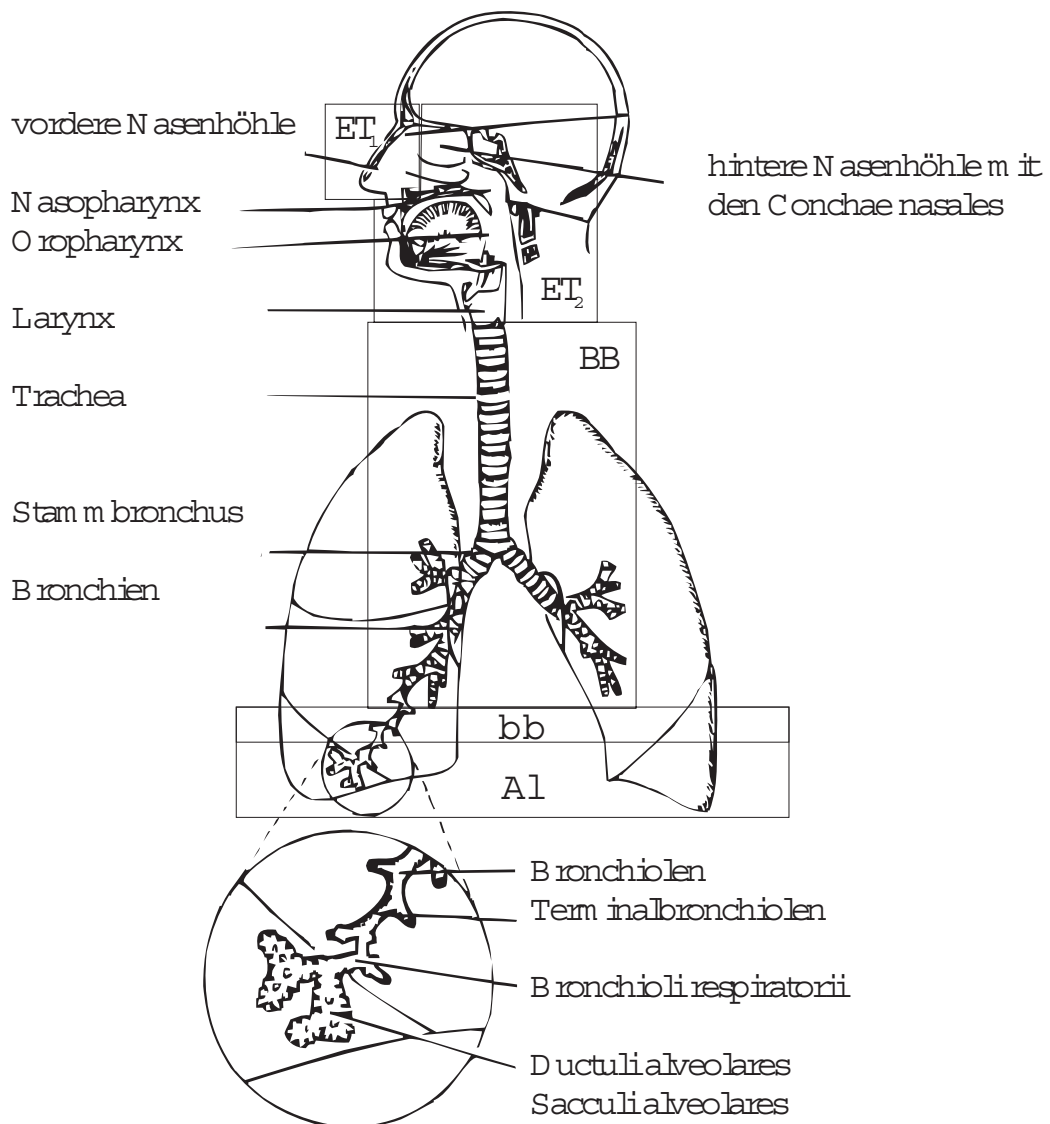


Abbildung 7.1: Anatomie des Atemtraktes und Einteilung in anatomische Regionen. Zur Erklärung der Abkürzungen ET₁, ET₂, BB, bb und Al siehe Text. Abbildung modifiziert nach ICRP [1994]

ne reine Luftleitung statt. Ab der 17. bis zur 19. Teilungsgeneration schließt sich an die rein luftleitende Zone die sogenannte Übergangszone mit den Bronchioli respiratorii und ab der 20. Teilungsgeneration die Respirationszone (Gasaustauschzone) mit den Ductuli alveolares und den Sacculi alveolares an. Zusammenfassend spricht man auch vom Bronchial-(BB) und Bronchiolarbereich (bb) sowie vom Alveolarbereich (Al), der sich aus Übergangs- und Respirationszone zusammensetzt. Partikel, die sich während eines Atemzyklus an den Wänden der luftleitenden bzw. respiratorischen Regionen des Atemtraktes anlagern, werden – eine gesunde Lungenfunktion vorausgesetzt – mit der Zeit wieder entfernt. Man unterscheidet hierbei drei Hauptreinigungswege, die im Folgenden näher erläutert werden sollen:

- Absorption der Stoffe ins Blut (BL)
- Transport in den Gastrointestinaltrakt (Gi) (Magen-Darmtrakt)
- Transport in die Lymphknoten (LN) über Lymphbahnen

Je nach Zusammensetzung und Größe der Partikel und je nach Depositionsort⁶ variiert sowohl der Reinigungsweg als auch die Reinigungsgeschwindigkeit. Der wasserlösliche Anteil der Partikel geht sehr schnell ins Blut über. Der wasserunlösliche Anteil wird im Bereich der Alveolen von Alveolarmakrophagen⁷ im Rahmen der Immunabwehr umschlossen und schließlich über das Lymphsystem abtransportiert. In den höheren, luftleitenden Atemwegen (BB- und bb-Region) ermöglicht vor allem der mukoziliare Transport des Flimmerhaarepithels⁸ eine effektive Reinigung der leitenden Atemwege.

7.1.2 Modell (Partikeldeposition & Selbstreinigung) der Lunge

Die Internationale Strahlenschutzkommission ICRP (International Commission on Radiological Protection) hat in ihrer Veröffentlichung [ICRP, 1994] Modelle zur Partikeldeposition und zur Selbstreinigung (Clearance) der menschlichen Atmungsorgane vorgestellt. Ziel war es hierbei insbesondere die Strahlendosis

⁶**Deposition:** Ablagerung von Partikeln

⁷**Alveolarmakrophage:** immunkompetente Zelle in der Lichtung der Alveole [Hildebrand, 1998]

⁸**Zilien** (Flimmerhärchen) auf der Oberfläche des Respirationsepithels (Flimmerhaarepithels) der Trachea, der Bronchien und zum Teil auch im Bereich der Bronchiolen befördern Schleim und Fremdkörper durch koordinierte Bewegungen mundwärts, wo sie anschließend verschluckt oder abgehustet werden

zu bestimmen, der eine Person nach einer einmaligen oder chronischen Exposition mit radioaktiven Stäuben ausgesetzt ist. Die in der Veröffentlichung vorgestellten Modellgleichungen wurden in der vorliegenden Arbeit nun für ein Modell zur Betrachtung der Auswirkungen einer Langzeitexposition mit atmosphärischen Aerosolpartikeln verwendet, wie dies von *Snipes et al.* [1997] für das Umgebungs-Modellaerosol von Phoenix, Arizona und Philadelphia, Pennsylvania (USA) erstmals untersucht wurde. Im Falle der Partikeldeposition handelt es sich um ein sequenzielles Filtermodell, bei dem für jede im Abschnitt 7.1.1 vorgestellte anatomische Region eine Filterfunktion (Filtereffizienz) als Funktion des Partikeldurchmessers und des Atemmusters sowohl für die Inhalation (Einatmung) als auch für die Exhalation (Ausatmung) zugeordnet ist. Sowohl die Filterfunktionen als auch Atemvolumen und Atemmuster unterscheiden sich stark je nach Tätigkeit (z.B. Schlafen, Sitzen, Liegen, leichte und schwere Arbeit), Geschlecht und Alter der Probanden. Im Gegensatz zu *Snipes et al.* [1997], der eine konstante, trimodale Größenverteilung, bei konstanter Partikelmassenkonzentration, ohne Berücksichtigung des Feuchteffektes auf das Wachstum der Partikel in den Atemwegen in seinen Rechnungen voraussetzte, werden hier jeweils aktuelle Messungen oder daraus abgeleitete mikrophysikalische Partikeleigenschaften als Grundlage für die Modellrechnungen verwendet. Als Verbesserung des ursprünglichen ICRP-Modells wird hier insbesondere dem Feuchtwachstum der Partikel besondere Aufmerksamkeit geschenkt.

Für die Modellrechnungen wird zunächst aus der gemessenen Größenverteilung der trockenen Partikel mit Hilfe des schon vorgestellten Wachstumsmodells die Größenverteilung für Partikel im Gleichgewicht mit der feuchten Umgebungsluft berechnet. Als weitere Verbesserung des ICRP-Modells wird im Körperinneren das weitere Wachstum der Partikel im Ungleichgewichtszustand berechnet, bevor Partikel in die einzelnen Regionen gelangen und dort deponiert (ausgefiltert) werden. Als Ergebnis dieses Depositionsmodells erhält man bei bekanntem Atemvolumen und Atemmuster für jede der fünf anatomischen Regionen (ET_1 , ET_2 , BB , bb , Al) die Anzahl der deponierten Partikel je Größenklasse und pro Atemzyklus. (Im Falle der LACE 98 -Daten also für 82 Größenklassen.) Als nächster Schritt wurde nun das ICRP-Clearancemodell zur Berechnung der Lungenselbstreinigung mit dem Depositionsmodell gekoppelt. Hierbei werden die Depositionsdaten pro Atemzyklus als Eingangsdaten des Clearancemodells verwendet. Jede anatomische Region wird für jede Partikelgrößenklasse in bis zu zwei mal drei Compartments aufgeteilt, die unterschiedliche Clearancegeschwindigkeiten besitzen. Die Compartments dienen im Modell quasi als „Konten“. „Einzahlungen“ erfolgen in Form von Deposition bzw. durch Transportvorgänge („Überweisungen“) aus anderen Compartments. Die Abbildungen 7.2 und 7.3 zeigen hierzu ein schematisches Übersichtsbild der Clearancewege und der zugehörigen typischen Clearanceraten in der Einheit [d^{-1}] nach [ICRP, 1994]. Die Clearancerate

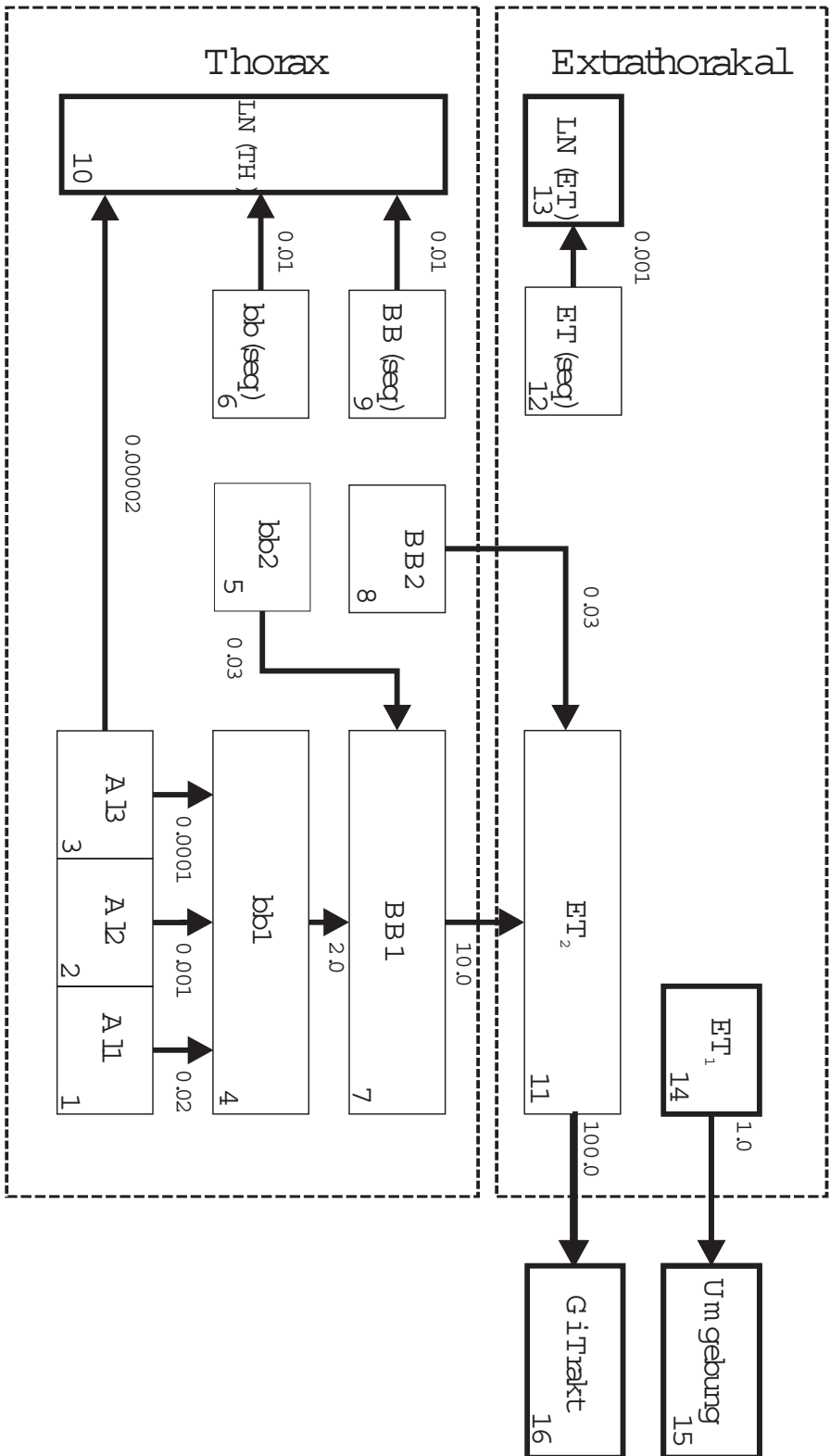


Abbildung 7.2: Schematische Darstellung der Transportwege und Clearance-raten zwischen den einzelnen Compartments. Das gezeigte Schema gilt sowohl für „Partikel im Grundzustand“ als auch für „Partikel im transformierten Zustand“ (vgl. Abbildung 7.3 auf der nächsten Seite). Die anatomischen Regionen AI, bb, BB, Gi und LN werden in bis zu drei Compartments (s. Text) unterteilt, die sich sowohl in Clearancewegen als auch in Clearance-raten unterscheiden. (In der hier verwendeten Nomenklatur folgt im Anschluss an die anatomische Regionskennung (z.B. AI) eine Ordnungszahl oder der Zusatz „seq“ (engl. „sequenced in tissue“ (abgesondert ins Gewebe)), „TH“ oder „ET“ für Thorax oder Extrathorakal also innerhalb oder außerhalb des Thorax gelegen. Erläuterungen zu den Abkürzungen der anatomischen Regionen sind im Text (7.1.1 auf Seite 150 zu finden. Abbildung modifiziert nach ICRP [1994].

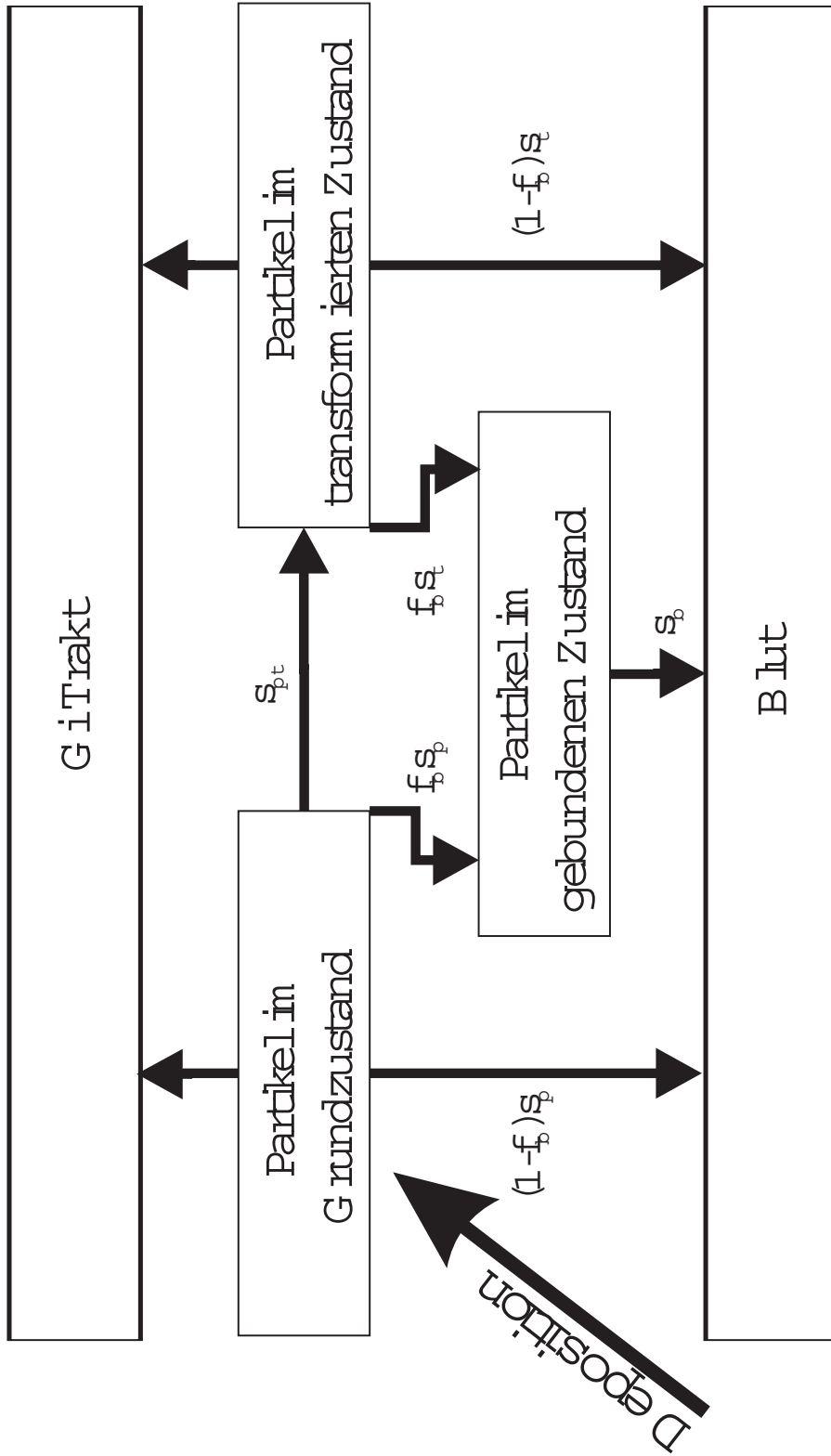


Abbildung 7.3: Schematische Darstellung des Compartmentmodells und der Clearancewege: Die Formelgrößen an den Pfeilen der Form s_{xx} bezeichnen Transportraten (Definition gleich der Definition der Clearancearten, s. Gleichung 7.1). f_b bezeichnet den Anteil der Partikel, der im Respirationsepithel „gebunden“ wird. Nach dem hier verwendeten Modell gilt allerdings $f_b = 0$. Abbildung modifiziert nach ICRP [1994].

λ_{cl} eines Compartments ist definiert durch:

$$\lambda_{cl} = \frac{-dA_c(t)/dt}{A_c(t)} \quad (7.1)$$

Hierbei bezeichnet $A_c(t)$ die Partikelmasse im Compartment c zur Zeit t . Wie in Abbildung 7.3 zu sehen, gelangen Partikel zunächst als „Partikel im Grundzustand“ in das Clearancemodell. Als Funktion der Zeit und des Partikeldurchmessers werden sie dann mit der Absorptionsrate s_p ins Blut bzw. mit der Transformationsrate s_{pt} in einen Zustand transformiert, der sich durch langsamere Absorptionsraten ins Blut auszeichnet. Außer in der ET₁-Region gelten für alle anatomischen Regionen die gleichen Absorptionsraten s_p und s_t ins Blut. Gleichzeitig wirken neben der Transformation und Absorption nun innerhalb der Gruppen „Partikel im Grundzustand“ und „Partikel im transformierten Zustand“ verschiedene Transportvorgänge, die in Abbildung 7.2 dargestellt werden. In der Fachliteratur wird ein dritter Partikelzustand (gebundene Partikel) diskutiert, bei dem ein mit f_b angegebener Anteil von Partikeln in den Respirationsepithelien eingelagert (gebunden) wird und von dort mit der Rate s_b schließlich ins Blut gelangt. Das ICRP-Modell berücksichtigt diesen Zustand allerdings nicht ($f_b=0$). Die ICRP unterscheidet drei Stoffklassen für schnelle („F“=fast), mittlere („M“) und langsame („S“=slow) Absorption mit entsprechend unterschiedlichen Absorptionsraten ins Blut. Den drei Hauptclearancewegen folgend, gelangen die Partikel schließlich in die Lymphknoten des Thorax (LN(TH)) bzw. des Nasen-Rachenraums (LN(ET)), wo sie zunächst eingelagert werden. Ferner gelangen Partikel (zum Großteil in gelöster Form) ins Blut, durch Verschlucken in den Gastrointestinaltrakt (Gi) oder durch Auswurf (Niesen) in die Umgebung (ENV). Die in Abbildung 7.2 verwendeten Indices (seq, 1,2 und 3) unterscheiden Compartments innerhalb einer anatomischen Region, die unterschiedliche Clearanceraten aufweisen. Eine detaillierte Beschreibung ist in [ICRP, 1994] nachzulesen.

Die Verwendung der jeweils $16 \times 2 = 32$ Compartments pro Größenklasse (bei 82 Größenklassen sind dies insgesamt 2624 Compartments) ermöglicht nun eine genaue Analyse, wie viele Partikel welcher Größe sich in einer bestimmten Region zu einem beliebigen Zeitpunkt des Experiments befinden. Eine Frage, die so beispielsweise beantwortet werden kann, ist die, ob und bei welcher Partikelanzahl/Partikelmasse sich ein Gleichgewicht zwischen Deposition und Clearance einstellt. Für toxikologische Betrachtungen ist insbesondere der ins Blut und in die Lymphknoten gehende Anteil der Partikelmasse zur Abschätzung der toxischen und karzinogenen Wirkung von Partikeln interessant. Unter Verwendung des LACE 98 -Datensatzes der aktuell gemessenen mikrophysikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel und der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Methoden, wird dieser Frage im folgenden Unterkapitel nachgegangen. Es sei hier nochmals erwähnt, dass die hohe zeitliche Auflösung der Eingangsdaten sowie die

detaillierte Modellierung des Wachstums der Partikel sowohl innerhalb wie außerhalb des Atemtraktes und die direkte Koppelung von Depositions- und Clearancemodell, eine erhebliche Verbesserung gegenüber den bisherigen vergleichbaren Studien darstellt.

7.2 Ergebnisse

Aufgenommene Tagesdosis und mittlere Partikelbelastung des Atemtraktes

Das vorgestellte ICRP-Depositions- und Clearancemodell stellt Parametrisierungen für Probanden verschiedener Altersklassen und Geschlechts unter unterschiedlichen Belastungen/Tätigkeiten (z.B. Sitzen, Liegen, leichte und schwere Arbeit) zur Verfügung. Ebenso sind innerhalb des Modells verschiedene funktionelle Lungenerkrankungen parametrisierbar. Im Rahmen der vorliegenden Dissertation werden die Modellergebnisse zunächst anhand des Referenzfalls einer erwachsenen Frau, die leichter Arbeit nachgeht, vorgestellt. Ein Vergleich von verschiedenen Probanden und Tätigkeiten wird anschließend anhand Tabelle 7.4 für jeweils drei ausgesuchte Fälle diskutiert. Eine vollständige Diskussion aller Tätigkeiten und Erkrankungen würde den Rahmen dieser Dissertation bei weitem sprengen. Sie ist nur im Rahmen einer gesonderten Untersuchung durchführbar.

Die berechneten, zeitabhängigen Partikelbelastungen der einzelnen anatomischen Regionen nach Deposition und Clearance unterscheiden sich sehr stark, je nach verwendeter Parametrisierung der Absorption der Partikel ins Blut. So kommt es bei der schon erwähnten Stoffklasse M (mit moderater Absorption) in allen anatomischen Regionen, bis auf den Extrathorakalbereich, zu einer Anreicherung von Partikeln, die innerhalb des Experimentzeitraumes von LACE 98 mit praktisch konstanten Anreicherungsraten verbunden sind (vgl. Abbildungen 7.4 auf der nächsten Seite und 7.5 auf der nächsten Seite).

Ein gänzlich anderes Verhalten ist hingegen bei der Stoffklasse F mit schneller Absorption ins Blut zu beobachten. Hier wird in allen anatomischen Regionen nach Ablauf einer gewissen Relaxationszeit von wenigen Tagen ein Gleichgewichtszustand erreicht. Dieser wird allerdings, je nach anatomischer Region, von unterschiedlich starken, kurzfristigen Schwankungen überlagert. Die beobachtete mittlere Standardabweichung beträgt in den Regionen Al, BB und bb ca. 50% und in der ET-Region 33%.

Eine Zusammenfassung der Ergebnisse ist für die Stoffklasse F in den Tabellen 7.1(a) und 7.1(b) auf Seite 159 sowie für die Stoffklasse M in den Tabellen 7.2(a) und 7.2(b) auf Seite 160 einzusehen. Unabhängig von der betrachteten Stoffklasse gelangen während LACE 98 im Mittel ca. $275 \mu\text{gd}^{-1}$ trockene Partikelmasse in den Körper und werden dort zunächst gebunden. Rund 38% werden

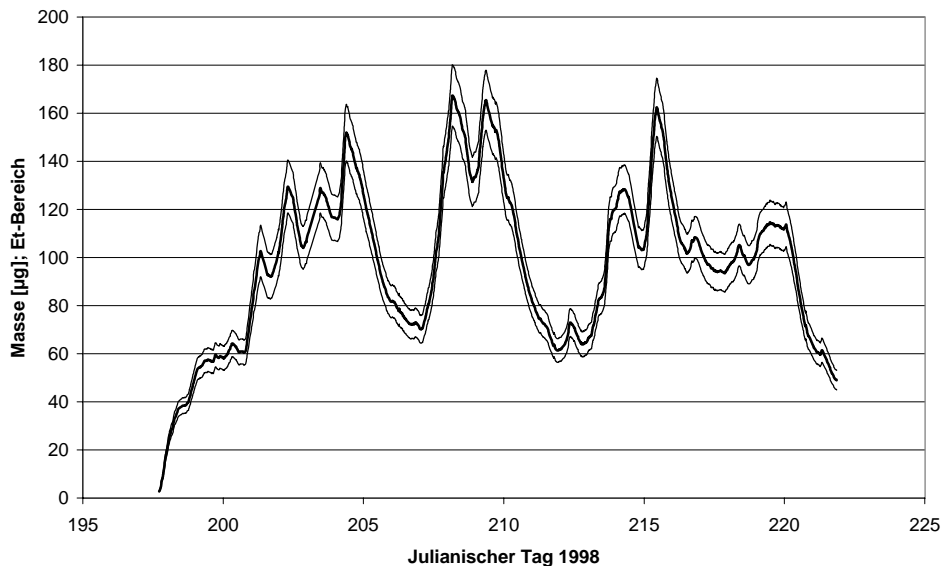


Abbildung 7.4: Zeitlicher Verlauf der Partikelbelastung im Nasenrachenraum (ET) während LACE 98 ; Stoffklasse: M; Proband: Frau; Tätigkeit: leichte Arbeit. Zusätzlich zum Mittelwert eingezeichnet sind die zugehörige untere und obere Fehlerschranke.

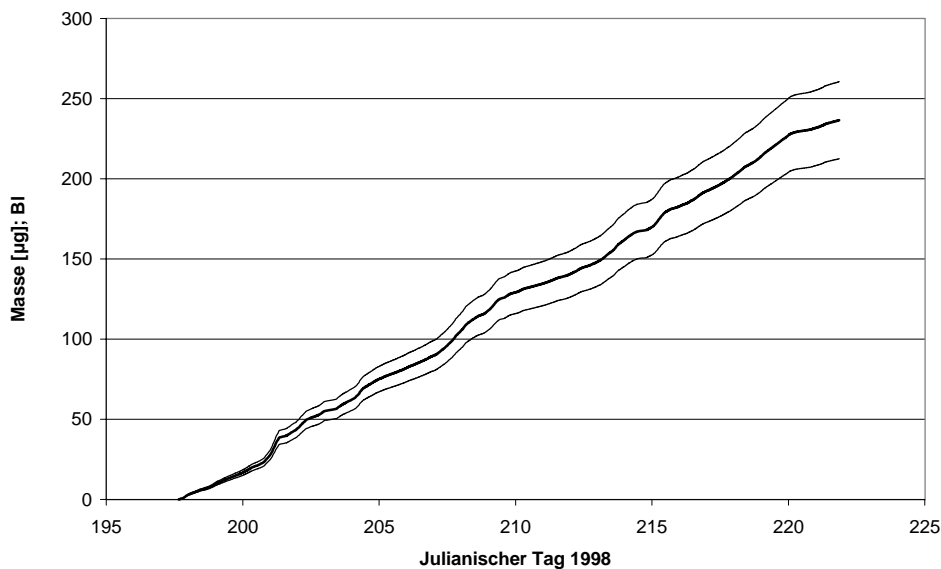


Abbildung 7.5: Zeitlicher Verlauf der Partikelbelastung im Blut während LACE 98; Stoffklasse: M; Proband: Frau; Tätigkeit: leichte Arbeit. Als Endpunkt des Clearanceweges besitzt der Blutbereich keine Senke. Die Grafik zeigt also die akkumulierte Partikelmasse an, die ins Blut absorbiert wird. Ein Vorteil dieser Darstellung ist, dass die Steigung der Kurve direkt der Tagesdosis der absorbierten trockenen Partikelmasse entspricht.

Stoffklasse F	Mittlere Partikelbelastung [μg]					Summe
	ET	BB	bb	Al	LN	
Mittelwert	96,9	0,02	0,036	0,19	$9,1 \cdot 10^{-8}$	97,15
Stabw	31,8	0,01	0,022	0,91	$4,6 \cdot 10^{-8}$	32,74
Fehler [%]	$\pm 7,77$	$\pm 10,9$	$\pm 13,5$	$\pm 11,7$	$\pm 12,2$	–

(a) Mittlere Belastung durch trockene Partikelmasse der Extrathorakal- (ET), Bronchial- (BB), Bronchiolar- (bb) , Alveolarregion (Al) und der Lymphknoten (LN)

Stoffklasse F	Tagesdosis [μgd^{-1}]			
	Blut	Gi	ENV	Summe
Mittelwert	105,6	63,9	105,4	274,9
R^2 [%]	99,6	99,45	99,7	–
Fehler[%]	$\pm 10,0$	$\pm 8,2$	$\pm 7,9$	$\pm 8,8$

(b) Tagesdosis der (1) ins Blut absorbierten, (2) in den Gastrointestinalbereich (Gi) verschluckten und (3) an die Umgebung durch Auswurf abgegebenen trockenen Partikelmasse

Tabelle 7.1: Modellergebnisse der Tagesdosis und mittlere Belastung einzelner anatomischer Regionen des Atemtraktes während LACE 98 ; Stoffklasse F (schnelle Absorption ins Blut). Die angegebenen Mittelwerte der Tagesdosis wurden mit Hilfe einer linearen Regression bestimmt, deren Bestimmtheitsmaß R^2 in der vorletzten Zeile angegeben ist. In der letzten Zeile ist außerdem der mittlere Modellfehler, resultierend aus Fehlern bei der Feuchtemessung (1%), Größenverteilungsmessung(10%) und aus der Radiuskorrektur, angegeben. (Vgl. hierzu Kapitel 5).

Stoffklasse M	[μg]	Mittlere Akkumulationsrate [μgd^{-1}]				
	ET	BB	bb	Al	LN	Summe BB–Al
Mittelwert	98,1	1,54	2,33	32,09	nicht	35,96
Stabw	31,9	0,0065	0,017	0,11	linear	0,13
R^2 [%]	–	96,8	96,8	97,6	–	–
Fehler [%]	$\pm 8,05$	$\pm 11,03$	$\pm 13,7$	$\pm 11,9$	–	11,97

(a) Aufgeführt sind die mittlere Belastung durch trockene Partikelmasse im Extrathorakalbereich (ET) sowie die beobachtete Akkumulationsraten der Bronchial- (BB), Bronchiolar- (bb), Alveolarregion (Al) und der Lymphknoten (LN)

Stoffklasse M	Tagesdosis [μgd^{-1}]			
	Blut	Gi	ENV	Summe
Mittelwert	10,04	123,5	105,5	239,04
R^2 [%]	99,8	99,7	99,8	–
Fehler[%]	$\pm 10,1$	$\pm 8,6$	$\pm 8,1$	$\pm 8,5$

(b) Aufgeführt sind die Tagesdosen der (1) ins Blut absorbierten, (2) in den Gastrointestinalbereich (Gi) verschluckten und (3) an die Umgebung durch Auswurf abgegebenen trockenen Partikelmasse

Tabelle 7.2: Modellergebnisse der Tagesdosis und mittlere Belastung einzelner anatomischer Regionen des Atemtraktes während LACE 98 ; Stoffklasse M (moderate Absorption ins Blut) Die angegebenen Mittelwerte der Tagesdosis wurden mit Hilfe einer linearen Regression bestimmt, deren Bestimmtheitsmaß R^2 in der vorletzten Zeile angegeben ist. In der letzten Zeile ist außerdem der mittlere Modellfehler, resultierend aus Fehlern bei der Feuchtemessung (1%), Größenverteilungsmessung(10%) und aus der Radiuskorrektur, angegeben. (Vgl. hierzu Kapitel 5).

im Rahmen der mukoziliären Reinigung und durch einfaches „Naseputzen“ wieder an die Umgebung abgegeben. Systemisch wirksam gelangen demnach rund 62% $\equiv 170 \mu\text{gd}^{-1}$ trockene Partikelmasse über den Atemtrakt in den Körper. Betrachtet man die Stoffklasse F, so zeigt sich, dass über 99% der latent in den Atemwegen befindlichen Partikelmasse im Extrathorakalbereich lokalisiert sind (96,9 μg). Im Falle der Stoffklasse M sind es am Ende des Experimentes hingegen lediglich 11%. Mit der Zeit wird der relative Anteil der in der ET-Region eingelagerten Partikelmasse weiterhin abnehmen. Dies liegt daran, dass sich die Compartments der Al, bb und BB-Region immer weiter füllen, bis sich ein Gleichgewichtszustand zwischen der Akkumulationsrate A_r und mittleren Clearancerate in den Regionen eingestellt hat.

Nimmt man an, dass die Akkumulationsrate A_r und die Clearanceraten λ_{cl} konstant sind, beschreibt folgende inhomogene Differentialgleichung den zeitlichen Verlauf der Partikelmasse $R_0(t)$ in einem Compartment

$$-\frac{dR_0(t)}{dt} = \lambda_{cl}R_0(t) + A_r \quad (7.2)$$

Mit der Randbedingung $R_0(t = 0) = 0$ lautet die Lösung dieser Differentialgleichung:

$$R_0(t) = \frac{A_r}{\lambda_{cl}} (\exp(-\lambda_{cl}t) - 1) \quad (7.3)$$

Der Gleichgewichtsfall zwischen Deposition und Clearance berechnet sich aus dem Grenzfall $\lim_{x \rightarrow \infty}$ der Gleichung 7.3. Es gilt:

$$R_\infty = -\frac{A_r}{\lambda_{cl}} \quad (7.4)$$

Die Zeit, die vergeht, bis $R_0(t)$ 90% des Gleichgewichtswertes R_∞ erreicht ($t_{90\%}$), wird mit folgender Gleichung berechnet:

$$t_{90\%} = \frac{-\ln 0,1}{\lambda_{cl}} \quad (7.5)$$

Die Ergebnisse für R_∞ und $t_{90\%}$ sind in Tabelle 7.3 auf der nächsten Seite einzusehen. Der zeitliche Verlauf der Partikelbelastung in den Regionen Al, bb und BB über die Dauer von 550 Tagen ist anhand von Modellrechnungen in Abbildung 7.6 auf der nächsten Seite dargestellt.

Nach rund einem Jahr sind unter extrapolation der LACE 98 Daten ca. 4,8mg trockene Partikelmasse im Alveolarbereich (Al) im Fließgleichgewicht vorhanden. Bei der Stoffklasse M sind im Gleichgewichtszustand also ca. 97% der latent im Atemtrakt vorhandenen Partikel in der Alveolarregion lokalisiert. *Snipes*

	al	BB	bb
A_r [$\mu\text{g d}^{-1}$]	32,09	1,54	2,33
λ_{cl} [d^{-1}]	0,0066	0,027	0,027
R_∞ [μg]	4855	57	86
$t_{90\%}$ [d]	348	85	85

Tabelle 7.3: Partikelmasse R_∞ in den anatomischen Regionen Al, bb und BB im Gleichgewichtszustand zwischen Akkumulationsrate A_r und Lungenreinigung mit der Clearance λ_{cl} . Ferner ist die Retentionszeit $t_{90\%}$ verzeichnet, nach deren Verlauf $R_0(t)$ 90% des Gleichgewichtswertes erreicht. Proband: Frau, Stoffklasse: M, Tätigkeit: leichte Arbeit

et al. [1997] kommt im Falle der Alveolar-Region mit 2,1mg (9mg) Philadelphia-Aerosol (Phoenix-Aerosol), bei einer Partikelkonzentration von $50 \mu\text{g m}^{-3}$, zu vergleichbaren Ergebnissen. (Zum Vergleich: Während LACE 98 wurde im Mittel eine Partikelkonzentration von $20 \pm 10 \mu\text{g m}^{-3}$ und eine maximale Partikelkonzentration von $90 \mu\text{g m}^{-3}$ beobachtet.) Der Gleichgewichtszustand (90% Wert) wird hierbei nach rund 1 Jahr (Philadelphia) bzw. ca. 10 Jahren (Phoenix) erreicht. Die beobachteten längeren Retentionszeiten in Phoenix führt *Snipes et al.* [1997] auf einen höheren Anteil von Partikeln $>10\mu\text{m}$ im Vergleich zu Philadelphia zurück.

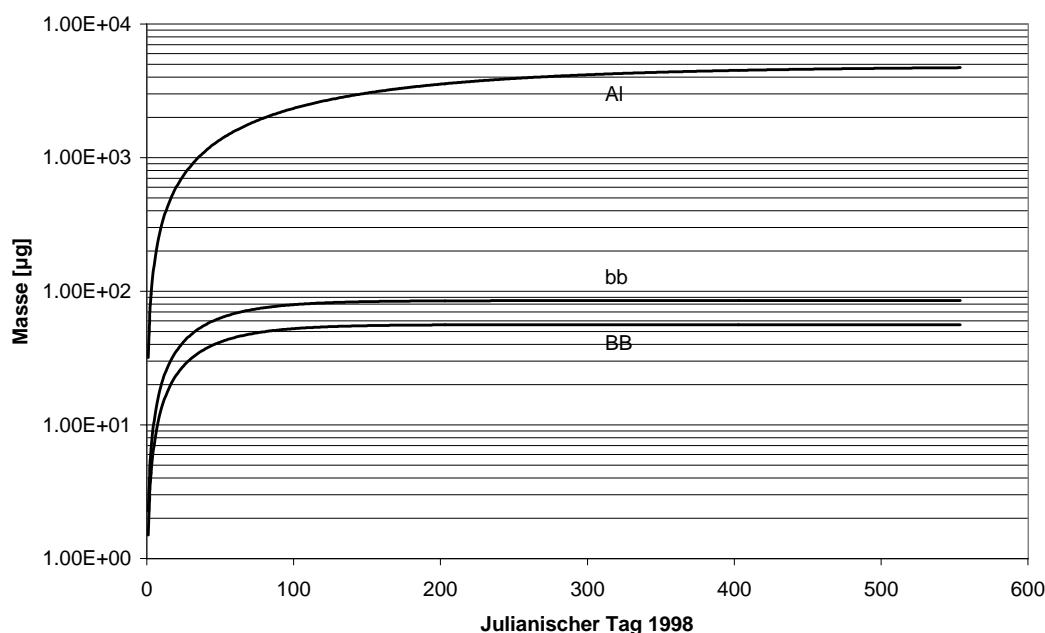


Abbildung 7.6: Zeitlicher Verlauf der eingelagerten Partikelmasse in den Regionen Al, bb und BB: Stoffklasse M unter der Annahme einer konstanten Akkumulationsrate A_r . (vgl. auch Tabelle 7.3)

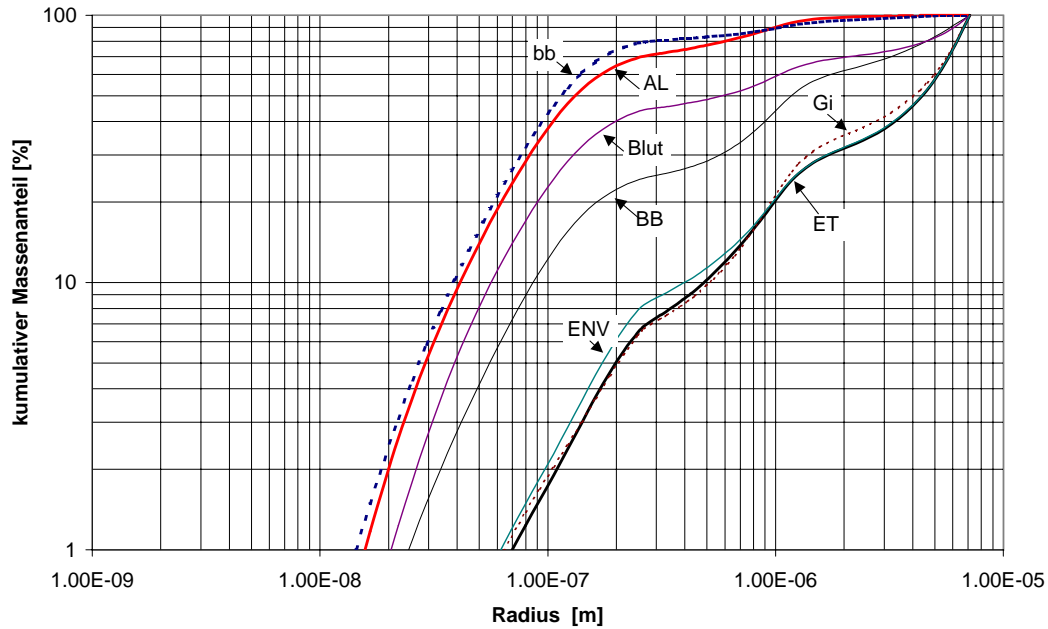
Da die chemische Zusammensetzung und somit auch die Toxizität der Partikel stark mit der Teilchengröße variieren, sollen nun abschließend die massennormierten mittleren Größenverteilungen von den Partikeln betrachtet werden, die sich in den jeweiligen anatomischen Regionen (Al, bb, BB, ET, Gi und LN) befinden bzw. die in die Umgebung (ENV) abgegeben werden. Dargestellt sind in den Abbildungen 7.7 auf der nächsten Seite die kumulativen Massenanteile in % der in der jeweiligen Region eingelagerten bzw. an die Umgebung abgegebenen Partikelgesamtmasse als Funktion des Partikelradius.

Wie leicht aus den Abbildungen abzulesen ist, stammen 89% der Partikelmasse der ET-Region von Teilchen mit Radien größer $1\mu\text{m}$ und sogar 50% von Teilchen größer $4\mu\text{m}$. Der massengewichtete mittlere Teilchenradius (50% Perzentil) beträgt in den Regionen Al, bb und LN $0,1-0,11\mu\text{m}$, im Blut rund $1\mu\text{m}$. Die Stoffklassen F und M zeigen in dieser Darstellung nur geringe Differenzen. Eine Ausnahme bildet hier die Gi-Region, der bei langsamer Absorption (Stoffklasse M) wesentlich mehr kleine Partikel enthält. Die kleinen Partikel stammen aus den unteren Atemwegen und werden durch den mukoziliaren Transport bis zum Larynx transportiert und dort schließlich verschluckt. Im Falle der Stoffklasse F stammen die im Gi-Trakt befindlichen Partikel fast ausschließlich aus dem Nasen-Rachenraum. Dies zeigt sich an dem praktisch identischen Verlauf der kumulativen Massenanteile (Gi und ET) in Abbildung 7.7.

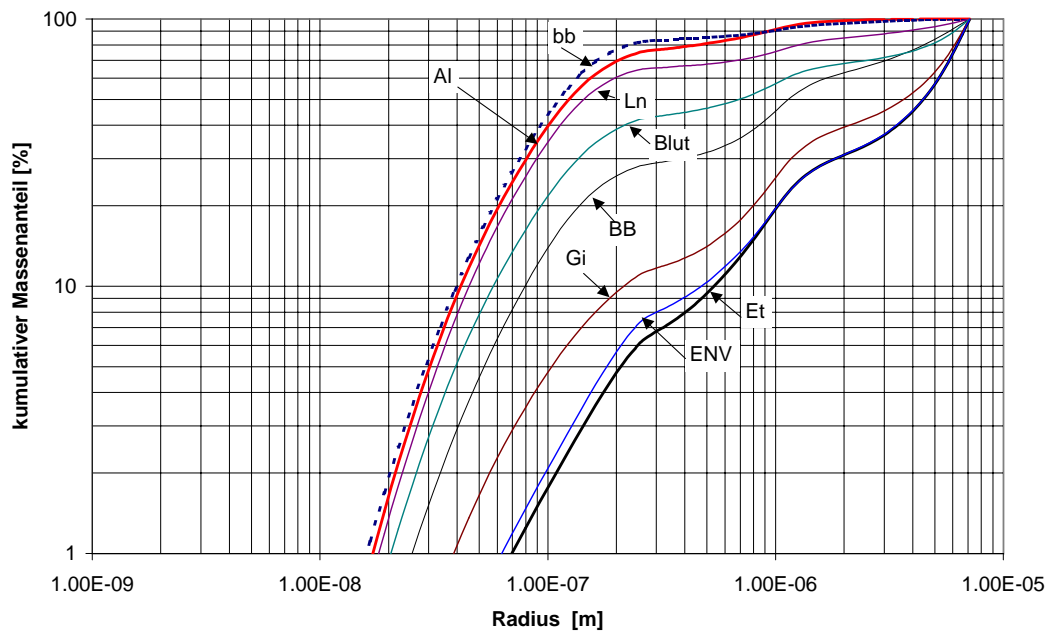
Wie bereits am Anfang dieses Ergebnisteils erwähnt, unterscheiden sich die Ergebnisse zum Teil um mehr als 50%, je nachdem welche Probanden und Tätigkeiten den Rechnungen zugrunde gelegt werden. Ein Eindruck der zu erwartenden Variabilität ist Tabelle 7.4 auf Seite 165 zu entnehmen.

Männer haben hiernach bei leichter Arbeit insgesamt eine um ca. 19% erhöhte Tagesdosis. Bei einem 10-jährigen Kind ist hingegen mit einer 7% geringeren Tagesdosis zu rechnen. Der Unterschied zwischen Mann und Frau ist zum überwiegenden Teil durch die im Mittel rund 20% höhere Ventilationsrate⁹ \hat{V} begründet. Bei einem 10-jährigen Kind würde man aufgrund der gegenüber einer erwachsenen Frau um 10,5% geringeren Ventilationsrate eine geringere Partikelbelastung erwarten als beobachtet. Erklärt wird die beobachtete Differenz durch anatomische und physiologische Unterschiede, die insbesondere in der ET-Region zu einer beim Kind erhöhten Filtereffizienz führen. Besonders erwähnenswert ist außerdem eine ebenfalls anatomisch bedingte, um 10% geringere Partikelbelastung des Alveolarbereichs der Probandengruppe „10-jähriges Kind“, als dies das reine Ventilationsratenverhältnis erwarten lassen würde. Setzt man jedoch die Modellergebnisse in Relation zur Körpermasse, was im Rahmen der toxikologischen Betrachtung die wichtigere Größe ist, so erfährt ein Kind offensichtlich eine ein-

⁹**Ventilationsrate:** Pro Zeiteinheit ventiliertes (ein- und ausgeatmetes) Luftvolumen; Einheit:[lmin^{-1}]



(a) Stoffklasse F



(b) Stoffklasse M

Abbildung 7.7: Kumulative Massenanteile der in den anatomischen Regionen Al bis Gi eingelagerten bzw. an die Umgebung ENV abgegebenen Partikelmasse als Funktion des Partikelradius. Diskussion der Ergebnisse s. Text

Arbeit	rel. Tagesdosis			rel. Akkumulationsrate			rel. Belastung		
	In	Gi	Blut	ENV	BB	bb	AI	Gesamt	ET
Frau	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%
Mann	116%	119%	119%	119%	123%	112%	120%	119%	119%
Kind	75%	94%	87%	95%	85%	81%	80%	93%	95%

(a) Vergleich der deponierten Partikelmasse (Et) bzw. aufgenommenen Tagesdosen (In-AL) trockener Partikelmasse zwischen verschiedene Probandengruppen. Als Vergleichsbasis (100%) wurde die Probandengruppe, „erwachsener Frau“, Tätigkeitsmerkmal: „leichte Arbeit“ gewählt.

Frau	rel. Tagesdosis			rel. Akkumulationsrate			rel. Belastung		
	In	Gi	Blut	ENV	BB	bb	AI	Gesamt	ET
Arbeit	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%
Sitzen	49%	27%	33%	25%	40%	58%	35%	29%	26%
schlafen	45%	22%	29%	20%	34%	55%	31%	24%	20%

(b) Vergleich der deponierten Partikelmasse (Et) bzw. aufgenommenen Tagesdosen (In-AL) trockener Partikelmasse bei der Probandengruppe : „erwachsene Frau“ zwischen verschiedenen Tätigkeitsmerkmalen. Als Vergleichsbasis (100%) wurde das Tätigkeitsmerkmal : leichte Arbeit (100%) gewählt.

Tabelle 7.4: Relativer Vergleich der Tagesdosis / Akkumulationsrate als Funktion (a) verschiedener Probanden und (b) verschiedener Tätigkeitengruppen

einhalbmals höhere Belastung pro kg Körpergewicht als eine Frau. Dies muss beispielsweise bei der Festsetzung von Immissionsgrenzwerten berücksichtigt werden.

Die beobachteten relativen Unterschiede der Partikelbelastung und der Akkumulationsraten der einzelnen anatomischen Regionen bei gleicher Probandengruppe, aber unterschiedlicher Tätigkeit „*x*“, können im Falle einer erwachsenen Frau bis zu 80% betragen. Die systemisch wirkende Tagesdosis (Summe LN-ENV) verhält sich jedoch, bis auf wenige Prozent Unterschied, analog, wie es das Verhältnis der Ventilationsraten $\hat{V}_x / \hat{V}_{\text{Arbeit}}$ 26% (31%) schlafen (sitzen) erwarten lässt. Ein gesonderter Modelllauf für die unterschiedlichen Tätigkeitsmerkmale scheint also zur Berechnung der systemisch wirkenden Tagesdosis nicht erforderlich zu sein.

Zusammenfassung

Die hier vorgestellten Ergebnisse sind –wie bereits erwähnt– lediglich als einführende Studie in ein komplexes Problem aufzufassen. Die verwendeten mikrophysikalischen Messungen und insbesondere die ungenügende bzw. ungenaue Information über Größe der Partikel (Durchmesser größer $4\mu\text{m}$) (vgl. Schließungsergebnisse Kapitel III) machen einen Transfer der Ergebnisse mit möglichen Langzeitversuchen am Probanden schwierig. Eine Beschränkung auf die kleine Partikelfraktion (Partikeldurchmesser von 3nm – $10\mu\text{m}$ (PM_{10})) macht allerdings diese Studie für Toxikologen interessant. In der PM_{10} -Feinstaubfraktion und insbesondere in der in letzter Zeit favorisierten $\text{PM}_{2,5}$ -Fraktion [Dockery *et al.*, 1993; Pope *et al.*, 1995] werden toxikologisch wirkende Substanzen vermutet, die aufgrund der bei kleinen Partikeln relativ zur Partikelmasse großen Oberfläche biologisch besonders wirksam sind.

Ungeachtet der genannten Probleme sind die hier vorgestellten Ergebnisse eine wesentliche Verbesserung gegenüber den bisher veröffentlichten Studien insbesondere durch die möglichst realitätsnahe Modellierung des Wachstums der Partikel außerhalb und innerhalb des Atemtraktes und die Verwendung von aktuellen Messungen der mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel.

In einer weiterführenden Studie sollte neben der Betrachtung der Masse der Partikel ebenfalls ihre Anzahlkonzentration bzw. ihre Gesamtoberfläche in den einzelnen anatomischen Regionen betrachtet werden. Gerade wasserunlösliche Partikel interagieren mit dem Respirationsepithel über ihre Oberfläche. Dementsprechend haben u. U. viele kleine Partikel einen größeren Einfluss als wenige große Partikel. Dieser Umstand wird zur Zeit noch strittig in der Fachliteratur diskutiert [Murphy *et al.*, 1998; Schwartz & Naes, 2000].

Kapitel 8

Meteorologische und statistische Analyse der Ergebnisse

In den vorangegangenen Kapiteln wurden die verschiedenen Messverfahren und Modelle vorgestellt und ihre Ergebnisse charakterisiert. In diesem Kapitel wird nun anhand meteorologischer und statistischer Kriterien eine Art Zusammenschau (Synopsis) vorgenommen. Darüber hinaus werden im Rahmen der Charakterisierung der LACE 98 -Ergebnisse auch Messungen der zur Qualitätssicherung durchgeführten MACE 99 ¹-Messkampagne auf dem Gelände der GSF in Neuherberg (München), einem städtisch geprägten Messort, verwendet. Als Ausgangspunkt dienen die in der Diplomarbeit *Bundke* [1997] erprobten Verfahren und daraus abgeleitete Erkenntnisse. Die umfangreiche statistische Analyse führt zu der verblüffenden These, dass die optischen Partikeleigenschaften stark mit großräumigen synoptischen Systemen – den planetaren Wellen (Rossbywellen) – verknüpft sind.

8.1 Überblick

Bei der Darstellung der einzelnen Messergebnisse und Modellrechnungen wurde deutlich, dass die Zeitreihen neben einer rein stochastisch begründeten Variabilität auch meteorologisch bedingte, typische Verläufe (Signaturen) aufweisen. In der Diplomarbeit *Bundke* [1997] wurde im Rahmen einer statistischen Zeitreihenanalyse der anthropogene Einfluss auf den Extinktionskoeffizienten trockener atmosphärischer Partikel untersucht. Es wurde eine hochsignifikante Wochenkomponente mit Hilfe des Lomb-Periodogramms² nachgewiesen. Mit Hilfe des

¹MACE 99 : Münchner Aerosol Charakterisierung Experiment

²**Lomb-Periodogramm:** Verfahren der Spektralanalyse einer Zeitreihe mit zeitlich nicht konstantem Messintervall – vgl. *Press et al.* [1992]

„Schätzers der Saisonfigur“ wurde schließlich am Standort Frankfurt-Innenstadt (FFM 96) die anthropogene Komponente des Extinktionskoeffizienten auf 20-25% bestimmt. Messungen, die 1996 parallel auf dem kleinen Feldberg (KLF 96) – einer Station ohne bedeutende anthropogene Beeinflussung durch lokale Partikelquellen – vorgenommen wurden, wiesen keinerlei signifikante zyklische Komponenten auf. Im Periodogramm des Streukoeffizienten zeigte sich allerdings ein Bereich höherer spektraler Energie bei der Periodenlänge von 5 Tagen. Aufgrund des niedrigen Signifikanzniveaus von $S_i=0,5$ wurde dieser Komponente allerdings keine Bedeutung zugewiesen. Dieser Komponente mit der Periodenlänge von ca. 5 Tagen wird aber noch eine zentrale Rolle für diese Studie zukommen. Anhand einer Korrelationsanalyse zwischen der Messreihe KLF 96 und FFM 96 wurde mit 70% erklärter Varianz ein hoher Kopplungsgrad der beobachteten Schwächungskoeffizienten an beiden Stationen festgestellt. Da diese Kopplung unabhängig von der Anströmungsrichtung war, konnte der Ferntransport von Aerosolpartikeln als wichtigster, den Messwert bestimmender Prozess identifiziert werden.

Um den Einfluss des Ferntransportes quantitativ beschreiben zu können, wurden daraufhin die einzelnen Messwerte nach insgesamt 8 typischen Zugwegen (Trajektorien) klassifiziert, die das betreffende Luftpaket in den letzten 72h zurückgelegt hatte (vgl. Abbildung 8.2 auf Seite 172). Für jeden Trajektorientyp wurden die Schätzer der Parameter a und b einer Weibull-Verteilung (vgl. Gleichung 8.1) mit Hilfe der so genannten „Maximum-Likelihood-Methode“ – einer Kleinst-Quadrate-Methode (KQ-Methode)³ – bestimmt.

$$F_{wb}(X) = 1 - \exp(-aX^b) \quad (8.1)$$

$$f_{wb}(X) = abX^{b-1} \exp(-aX^b) \quad (8.2)$$

F_{wb} = Weibull-Verteilungsfunktion mit den Parametern a und b

f_{wb} = Weibull-Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion

X = Zufallsvariable

Anhand der Form der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Messwerte konnten zwei Typen (ein maritimer und ein kontinentaler Typ) unterschieden werden. Bestätigt wurde dies zudem durch einen t-Test auf einen statistisch signifikanten Unterschied der Mittelwerte der beiden Typen. Die beobachtete Schiefe

³**KQ-Methode** nach C. F. Gauss – Sie bestimmt die Schätzwerte (z.B. einer linearen Regression) so, dass die Summe der Quadrate der Abweichungen zwischen beobachtetem y -Wert und auf der Regressionskurve zu liegendem y -Wert minimiert wird. [Rinne, 1995]

der Verteilungsfunktion aller Messwerte konnte auf eine Überlagerung der Verteilungsfunktionen der maritimen und der kontinentalen Typen zurückgeführt werden. Aufbauend auf diesen Erkenntnissen, wird im Folgenden eine analoge Analyse für die bisher genannten Ergebnisse vorgestellt. Anschließend werden die Ergebnisse dieser Analyse mit den Ergebnissen von *Bundke* [1997] verglichen.

8.2 Beschreibung der Messwerteverteilung mit Hilfe der Weibull-Verteilungsfunktion

Die Anpassung einer Stichprobe an eine theoretische Verteilungsfunktion ist ein statistisches Hilfsmittel, um Aussagen über die der Stichprobe zugrunde liegende Grundgesamtheit zu treffen. Eine Verteilungsfunktion, die die Grundgesamtheit beschreibt, ist unabhängig von der Wahl der Stichprobe und somit auch unabhängig von zufälligen Gegebenheiten, die das Ergebnis einer Stichprobe beeinflussen können.

Die Tabelle 8.1 zeigt nun die Schätzer der Parameter a und b der Weibull-Verteilung (vgl. Gleichung 8.1) für die Schwächungskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand. Sie wurden mit Hilfe der „Maximum -Likelihood-Methode“ [Hartung *et al.*, 1995; *Bundke*, 1997] numerisch iterativ für die Messkampagnen KLF 96 , FFM 96 , LACE 98, MACE 99 a und MACE 99 b berechnet. In der Tabelle ist außerdem sowohl der Testwert als auch der Testentscheid des χ^2 Anpassungstests, auf einem Signifikanzniveau von $\alpha=5\%$ verzeichnet. Dieser Test zeigt, dass die Anpassung der Weibull-Verteilung an die Stichprobe in praktisch allen Fällen vertretbar ist. Eine Ausnahme bilden die Messkampagnen MACE 99 a&b. Diese Messkampagnen besitzen mit jeweils 23 Messwerten einen sehr geringen Stichprobenumfang, so dass der Kolomogorof-Smirnov Anpassungstest besser als Testkriterium geeignet ist [Hartung *et al.*, 1995]. Bei diesem Test kann „die Nullhypothese einer vertretbaren Anpassung auf einem Signifikanzniveau von 95% nicht verworfen werden“, so dass die Anpassung vertretbar scheint.

Die Abbildungen 8.1 auf Seite 171 zeigen einen direkten Vergleich der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand bzgl. der verschiedenen Messkampagnen. In der Frankfurter Innenstadt (FFM 96) werden die höchsten Werte des Extinktionskoeffizienten beobachtet. Die während der Wintermonate beobachteten Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen (KLF 96 und FFM 96) sind außerdem wesentlich „breiter“ angelegt, als die zu den Sommermonaten gehörenden Funktionen (LACE 98 und MACE 99 b). Die Wintermonate zeigen also eine größere Varianz der Messwerte auf. Der Unterschied des Modalwertes zwischen urbaner und nicht-

σ_e	KLF 96	FFM 96	LACE 98	MACE 99 a	MACE 99 b
a	4,338E+12	3,127E+13	2,682E+13	5,3425E+15	3,9924E+17
b	1,998E+00	2,221E+00	2,063E+00	2,429075	2,7269048
χ^2	5,16	5,88	5,83	15,6	2,4360355
Anpassung Vertretbar	✓	✓	✓	nein	✓
σ_s	KLF 96	FFM 96	LACE 98	MACE 99 a	MACE 99 b
a	1,426E+12	1,140E+13	1,259E+13	5,22E+13	2,18E+19
b	1,882E+00	2,099E+00	1,988E+00	2,0984381	2,9178274
χ^2	5,33	5,95	5,96	4,1378	1,4798
Anpassung Vertretbar	✓	✓	✓	✓	✓
σ_a	KLF 96	FFM 96	LACE 98	MACE 99 a	MACE 99 b
a	5,184E+14	1,431E+14	1,689E+14	8,05E+15	1,24E+15
b	2,132E+00	2,137E+00	1,953E+00	2,2737109	2,1849867
χ^2	4,501	5,493	6,23	17,17	6,8531161
Anpassung Vertretbar	✓	✓	✓	nein	nein
ω	KLF 96	FFM 96	LACE 98	MACE 99 a	MACE 99 b
a	122,246	23,396	20,071	2,83E+01	2,17E+02
b	16,765	10,551	18,218	8,3860553	13,273198
χ^2	4,09	4,218	4,44	17,8864	10,016986
Anpassung Vertretbar	✓	✓	✓	nein	nein
χ^2 Test					
Si	95%	95%	95%	95%	95%
Freiheitsgrade	4	6	6	4	4
Alpha- Quantil	9,49	12,59	12,59	6,25	6,25
χ^2					

Tabelle 8.1: Tabelle der Parameter a und b der Weibull-Verteilung für die Messkampagnen KLF 96 = Kleiner Feldberg 1996; FFM 96 = Frankfurt am Main 1996; LACE 98 (Lindenberg (Brandenburg)) und MACE 99 a & b München März/Juli 1999. Ferner verzeichnet ist der Testwert χ^2 des χ^2 -Anpassungstests und der Testentscheid, ob die Anpassung der Verteilungsfunktion an die Stichprobe vertretbar ist. Im untersten Teil der Tabelle sind folgende Kenngrößen verzeichnet, auf denen der Testentscheid basiert: a) das Signifikanzniveau S_i des Testes, b) die Zahl der Freiheitsgrade (χ^2 Test) sowie c) das zugehörige Alpha-Quantil der χ^2 Verteilung

urbaner Messstation ist im Winter wie im Sommer mit einem Faktor von 1,5 (MACE 99 / LACE 98) – 2 (FFM 96 / KLF 96) verbunden.

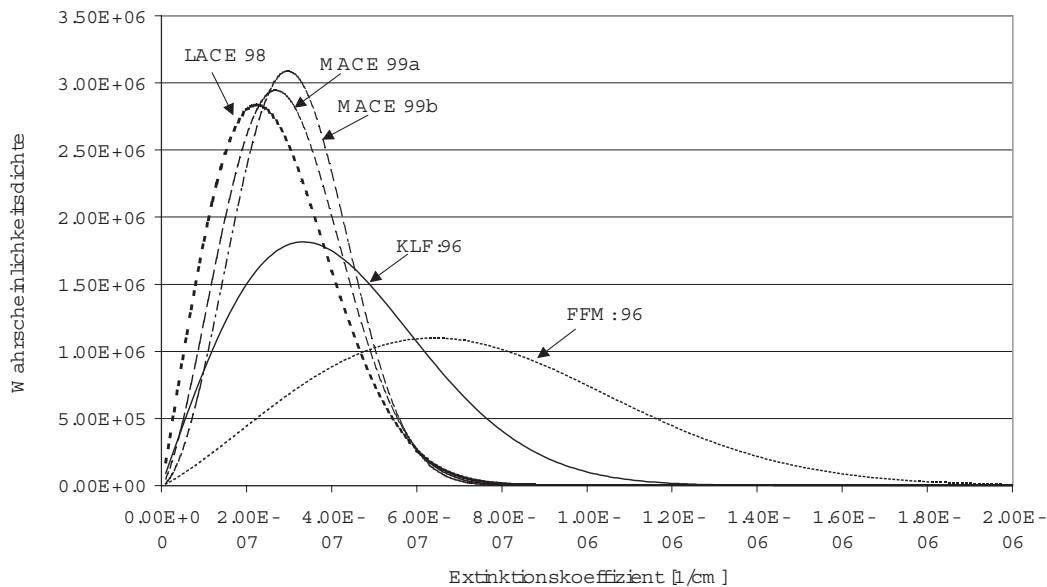


Abbildung 8.1: Vergleich der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen des Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel im trockenen Zustand für verschiedene Messkampagnen.

Wie schon in der Diplomarbeit *Bundke* [1997] beschrieben, zeigen die Verteilungsfunktionen eine typische Rechtsschiefe. Diese konnte durch die Überlagerung von trajektorienbezogenen Verteilungsfunktionen gewichtet mit ihrer Eintrittswahrscheinlichkeit erklärt werden. Eine trajektorienbezogene Analyse der optischen Eigenschaften soll im Folgenden vorgestellt werden.

8.3 Trajektorienanalyse

Abbildung 8.2 zeigt die von *Bundke* [1997] eingeführte Klassifikation in typische Zugbahnen (Trajektorien) anhand der vom Deutschen Wetterdienst (DWD) berechneten 72-Stunden-Rückwärtstrajektorien. Die eingezeichneten Typen 1-7 entsprechen den beobachteten mittleren Zugmustern und stehen stellvertretend für ein Ensemble von berechneten Rückwärtstrajektorien, die ähnliche Bahnen beschreiben und dabei gleiche Quellregionen von Aerosolpartikeln passieren. Trajektorien mit starkem Absinken, wie dies zum Beispiel im Zentrum von Hochdruckgebieten zu beobachten ist, werden gesondert betrachtet. Im Trajektorientyp 0 (Kurztrajektorie) werden alle Trajektorien zusammengefasst, bei denen kein Ferntransport auftrat, sondern sich das betrachtete Luftpaket lokal über dem Kontinent bei geringen Windgeschwindigkeiten befand.

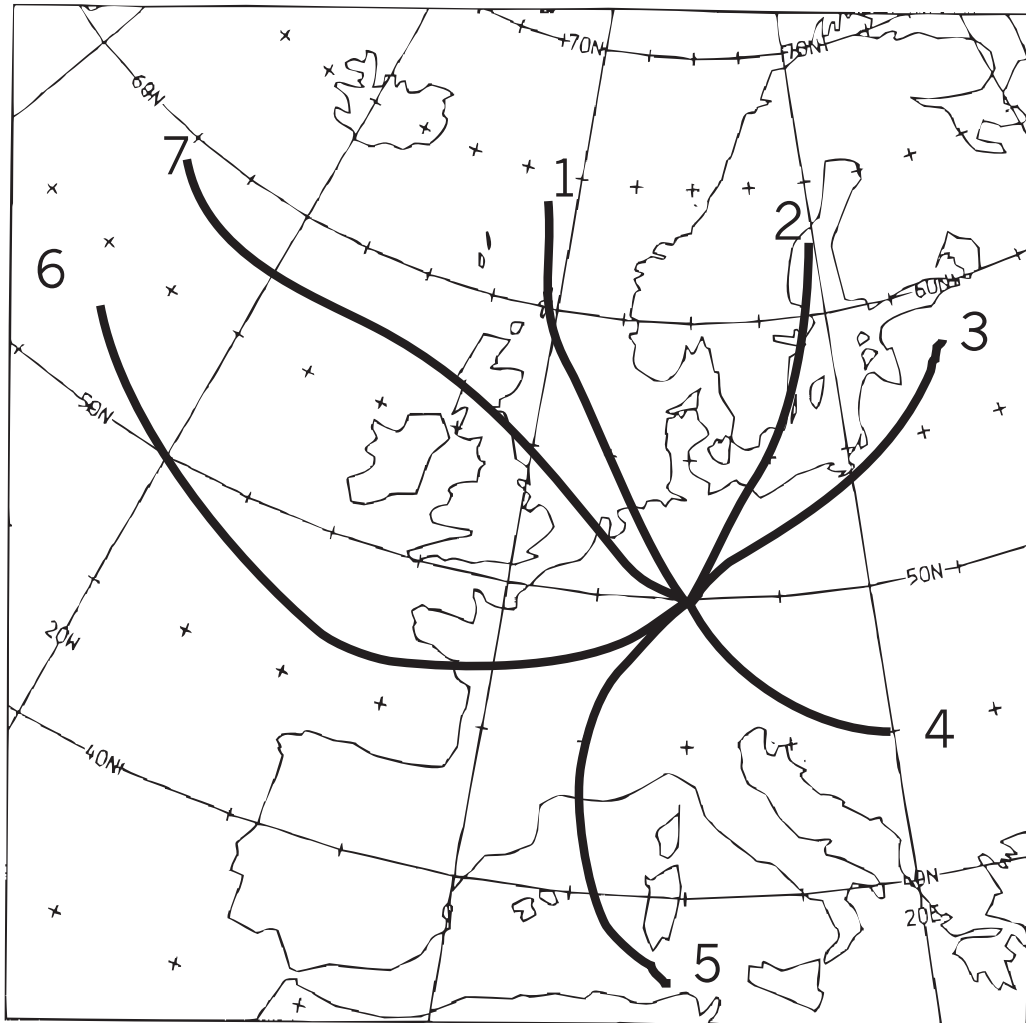


Abbildung 8.2: Einteilung der typischen Zugwege von Luftpaketen anhand von berechneten 72-Stunden-Rückwärtstrajektorien des Deutschen Wetterdienstes in sogenannte Trajektorientypen. Die vorgestellte Einteilung bewährte sich schon bei *Bundke* [1997] und wurde für LACE 98 übernommen.

Abbildung 8.3 zeigt Mittelwerte während der Messkampagnen KLF 96 und LACE 98 für die verschiedenen Trajektorientypen. Es zeigen sich die gleichen Strukturen der trajektorienbezogenen Mittelwerte beider Messkampagnen. Der Absorptionskoeffizient während KLF 96 ist lediglich, insbesondere bei den kontinental geprägten Trajektorientypen 3–5, gegenüber den vergleichbaren Werten bzgl. LACE 98 um den Faktor 2 erhöht. Die gefundenen Differenzen sind beim Streukoeffizient im Mittel kleiner als 16% bzw. 18% beim Extinktionskoeffizienten. Die erhöhten Absorptionskoeffizienten, insbesondere bei kontinentalen Trajektorientypen während KLF 96, können, der Argumentation von *Herrmann* [1994] folgend, auf verstärkten Hausbrand zurückgeführt werden, da die Messkampagne KLF 96 in den Wintermonaten stattfand.

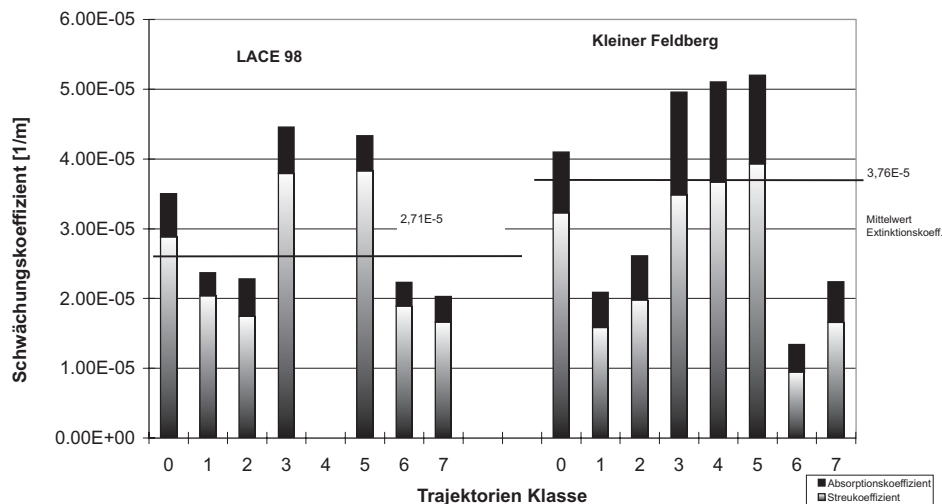


Abbildung 8.3: Mittelwerte bzgl. verschiedener Trajektorientypen des Streu- und Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel während LACE 98 und KLF 96 (Winter/Frühjahr 1996) [Bundke, 1997]. Die Gesamtsäulenhöhe entspricht dem Extinktionskoeffizienten als Summe von Absorptions- und Streukoeffizient. Die hier eingetragenen Werte wurden auf Standardtemperatur (20°C) und -druck (1013,25 hPa) normiert.

In Abbildung 8.4 sind die trajektorienbezogenen Mittelwerte der beiden MACE 99 -Kampagnen Mai /Juli 1999 abgebildet. Wie in Abbildung 8.3 zeigen sich auch hier wieder die gleichen, für die einzelnen Trajektorien typischen Strukturen. Zu beachten ist, dass der hier vertretene Trajektorientyp 5↓ mit Absinkprozessen verbunden ist und nicht mit dem Trajektorientyp 5 aus der Diplomarbeit *Bundke* [1997] verwechselt werden darf.

Am Beispiel des Extinktionskoeffizienten trockener Partikel werden anhand der zugehörigen Verteilungsfunktionen trajektorienbezogene Unterschiede beschrieben (Abbildung 8.5). Analog zu den Ergebnissen von *Bundke* [1997] kön-

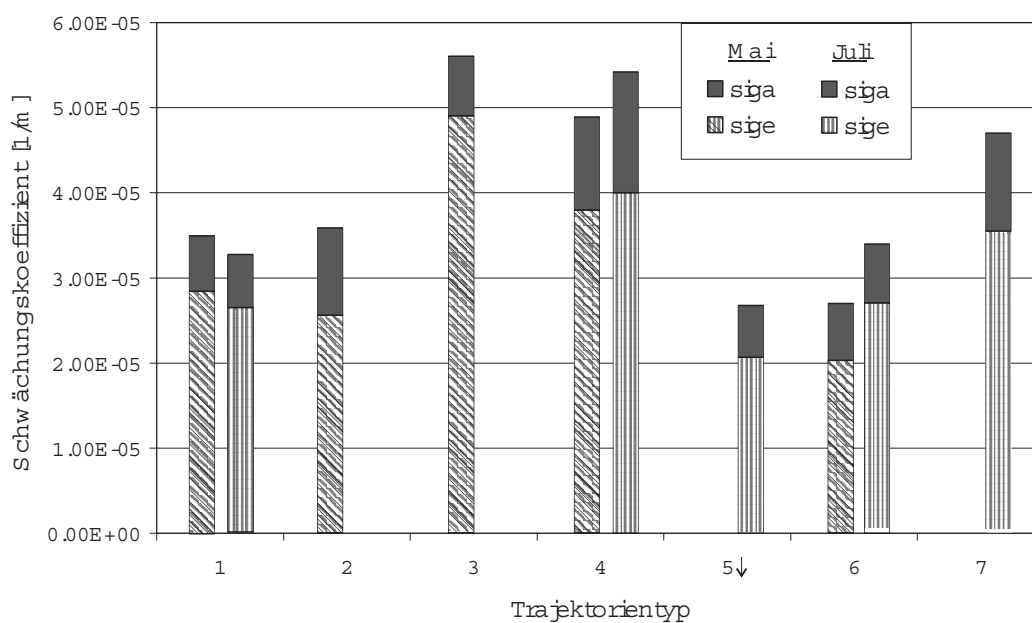


Abbildung 8.4: Mittelwerte nach Trajektorientypen des Streu- und Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel für die Feldmesskampagnen (MACE 99 a&b:München Mai/Juni 1999) Als Summe von Absorptions- und Streukoeffizienten entspricht die Gesamtsäulenhöhe dem Extinktionskoeffizienten. (Werte wurden auf Standardtemperatur (20°C) und Druck (1013,25 hPa)normiert.)

nen auch bei den LACE 98 –Daten, statistisch signifikant⁴, ein maritimer und ein kontinental geprägter Typ unterschieden werden. Der kontinentale Typ (während LACE 98 wurde nur Typ 3 beobachtet) ist mit einem Modalwert von $4,75 \times 10^{-5} \text{ [m}^{-1}\text{]}$ und einer linksschiefen Verteilungsform gekennzeichnet. Maritime Typen sind mit Modalwerten von $1,65 \times 10^{-5} \text{ [m}^{-1}\text{]}$ (Typ 7) bzw. $2,2 \times 10^{-5} \text{ [m}^{-1}\text{]}$ gekennzeichnet. Aufgrund des zu kleinen Stichprobenumfangs konnten für die Trajektorientypen 1, 2 und 5 keine Schätzer der Parameter a und b der Weibull-Verteilungsfunktion berechnet werden. Die beobachtete Schiefe der Verteilungsfunktion aller LACE 98 -Messwerte kann dann auf eine Superposition der nach der Anzahlhäufigkeit der Trajektorientypen gewichteten Verteilungsfunktion zurückgeführt werden.

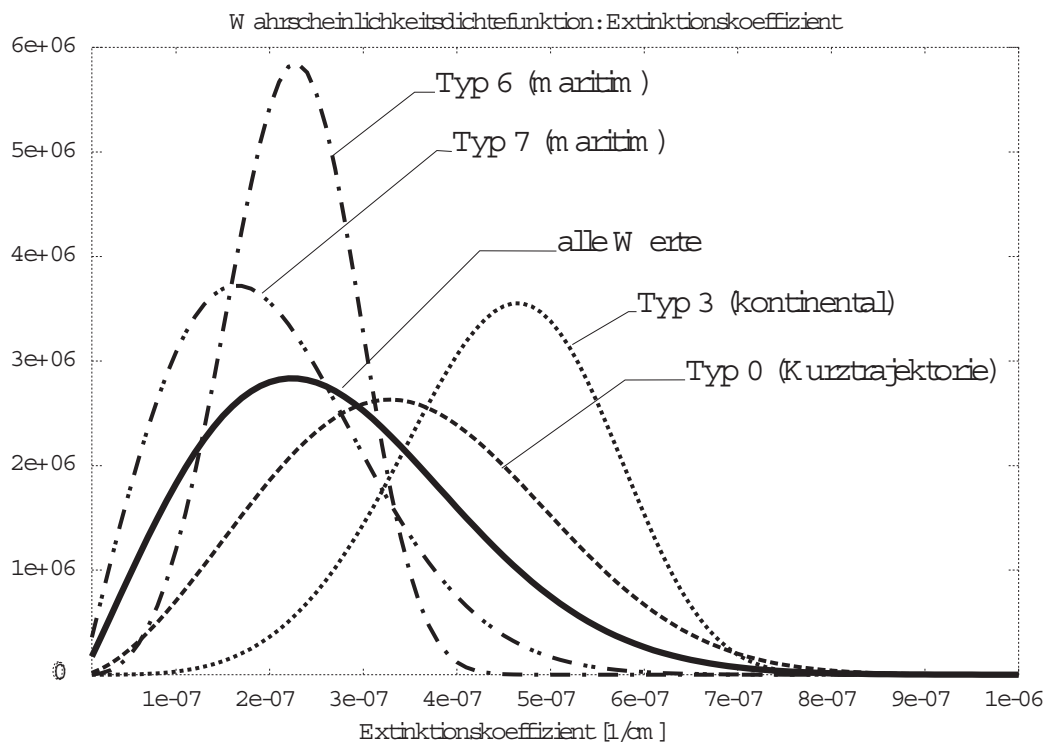


Abbildung 8.5: Vergleich der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen des Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel für verschiedene Trajektorientypen während LACE 98.

Mit Hilfe der trajektorienbezogenen Verteilungsfunktionen kann man also großräumige Transportprozesse und optische Eigenschaften der Partikel in Verbindung zueinander bringen. Die nachfolgende Zeitreihenanalyse wird aber am Ende zu einer These führen, die eine wesentlich generellere Verknüpfung zwi-

⁴mit Hilfe eines t-Test; Test auf einen Unterschied der Mittelwerte

schen großräumigen Zirkulationsformen und den optischen Eigenschaften der Partikel formuliert.

8.4 Zeitreihenanalyse

Einen ersten Eindruck über die Eigenschaften einer Zeitreihe bekommt man bei der Betrachtung der zugehörigen Autokorrelationsfunktion. Mit ihrer Hilfe kann man die Erhaltungstendenz einer Messgröße und eventuelle Periodizitäten innerhalb einer Zeitreihe qualitativ abschätzen. (Näheres s. z.B. *Hartung et al.* [1995])

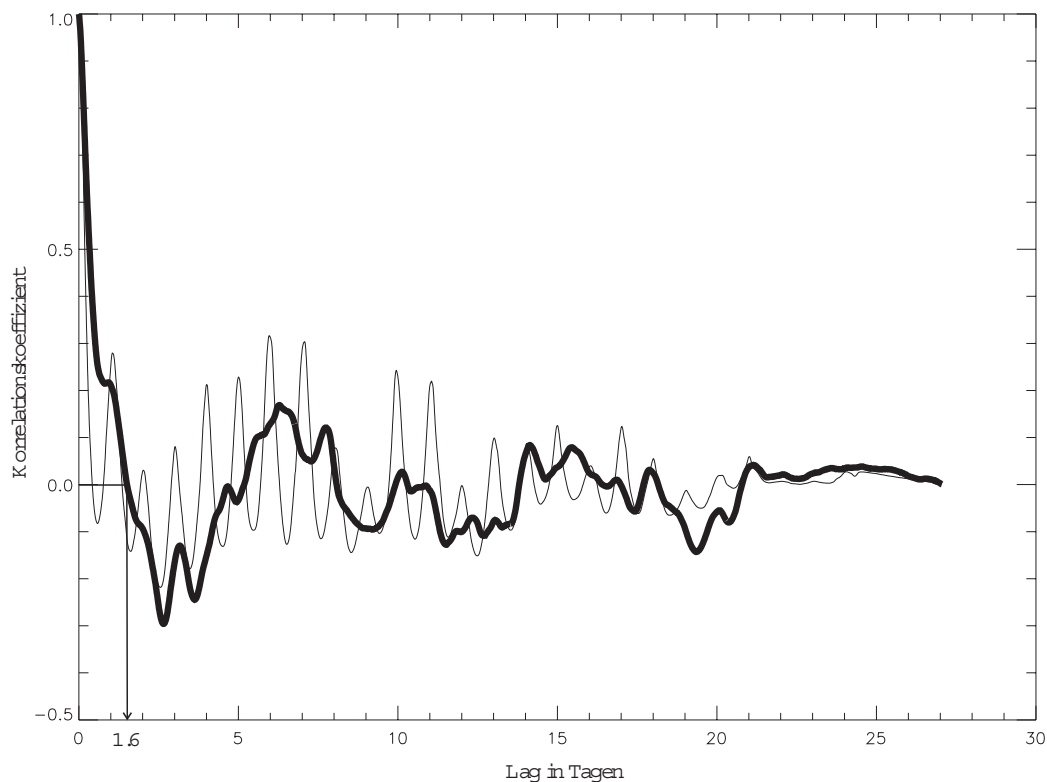


Abbildung 8.6: Autokorrelationsfunktionen des Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel im trockenen (dicke Linie) und feuchten Zustand (dünne Linie). Die Persistenzzeit der Zeitreihe des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand beträgt ca. 1,6 Tage und im feuchten Zustand deutlich kürzer als ein Tag.

In *Abbildung 8.6* sind die Autokorrelationsfunktionen des Extinktionskoeffizienten (mit dem Kugelschalenmodell berechnet) für Partikel im feuchten und im trockenen Zustand überlagert abgebildet. Die Zeitreihen haben eine zeitliche Auflösung von 15 min. Im Falle der Partikel im feuchten Zustand ist eine ausgeprägte

tagesperiodische Komponente zu beobachten, die bei Partikeln im trockenen Zustand entfällt. Sie ist somit offenkundig an den Tageszyklus der rel. Feuchte gekoppelt. Neben der eben beschriebenen Tagesperiode fällt bei beiden Kurven auch eine weitere zyklische Komponente mit einer Periodenlänge von ca. 5–5,5 Tagen auf. Die aus der Abbildung ablesbare Persistenzzeit von ca. 1,6 Tagen für Partikel im trockenen Zustand charakterisiert die Erhaltungstendenz eines Messwertes innerhalb der Zeitreihe. Die Persistenzzeit der Partikel im feuchten Zustand ist, bedingt durch den Tagesgang der Feuchte, deutlich kürzer als ein Tag. Die Form der in Abbildung 8.6 dargestellten Autokorrelationsfunktionen wird in dieser oder in sehr ähnlicher Form auch bei folgenden, in dieser Studie betrachteten Zeitreihen gefunden:

- relative Luftfeuchtigkeit f (12h Persistenz)
- Absorptionskoeffizient (1,6 Tage Persistenz)
- Streukoeffizient (1,6 Tage Persistenz)
- Sedimentationsgeschwindigkeit (2 Tage Persistenz)
- Anzahlkonzentration wachsender Wolkentropfen (3 Tage (Cumulonimbus) bzw. 4,5 Tage (Nebel) Persistenz)
- maximale Übersättigung in Wolken (1,8 (Nebel) bzw. 6 Tage (Cumulonimbus) Persistenz)
- Aktivierungsparameter B_0 (6 Tage Persistenz)

Als weiteres diagnostisches Hilfsmittel werden die Zeitreihen mit Hilfe des Lomb-Periodogramms zur genauen Bestimmung der Frequenzen/Perioden der zyklischen Komponenten untersucht. Abbildung 8.7 zeigt am Beispiel der Zeitreihe des Extinktionskoeffizienten der Partikel im feuchten Zustand (berechnet mit dem Kugelschalenmodell), die typischerweise während LACE 98 gefundenen Perioden der zyklischen Komponenten. Betrachtet man die Zeitreihen ohne Einfluss der rel. Feuchte, so verschwindet die Tagesperiode fast vollständig und das Signifikanzniveau der Periodenlängen von 3–7 Tagen steigt nochmals deutlich an. Ein Übersichtsschema der während LACE 98 beobachteten Periodizitäten ist in Tabelle 8.2 auf der nächsten Seite zusammengefasst.

Alle Zeitreihen, die direkt durch die Größenverteilung der Partikel beeinflusst werden, zeigen ein deutliches Maximum der zyklischen Komponente bei 5,5 Tagen und ein sekundäres Maximum bei den Periodenlängen von 3,0–3,5 Tagen. Lediglich Messreihen, die direkt von der rel. Feuchte f beeinflusst werden, zeigen –wie schon erwähnt– ihr absolutes Maximum im Lomb-Periodogramm bei

	Periodenlänge [d]																	
	1	1,5	2	2,5	3	3,5	4	4,5	5	5,5	6	6,5	6,5	7	7,5	8	8,5,	9
s_m Nebel		⊕								✕								
s_m Cumulus			⊕	+	⊕					✕							+	
s_m Cb	⊕	+		✕	+	+				⊕							+	
n_{sg} Nebel		+	+	⊕	⊕		+			✕							+	
n_{sg} Cumulus		+	+	+	+		✕			⊕								
n_{sg} Cb	+	+	+	⊕	+		✕	+	⊕	⊕								
$\sigma_{eM}(f)$	✕							+	⊕	⊕								
$\sigma_{eM}(f=0)$	+	+	+	+	+	⊕	+	+	⊕	✕						+		
ω_M	+				⊕	⊕	+		⊕	⊕								
IMGF σ_e	•				+	•	•		•	•								
IMGF σ_s	•				⊕	•	•		⊕	•								
IMGF σ_a					•	•	•											
IMGF ω	•				•	•	•											
IFT σ_s					•	•	•			⊕					+			
B_0	+	+	+	+	⊕			✕	+		⊕						+	
f	✕									+								
$\bar{u}(f=0,9)$	+	⊕	+	⊕			+	+	✕	✕						⊕		
$\bar{u}(f)$	✕	⊕	+	⊕			+	+	+	⊕						+		
$\bar{u}(f=0)$	⊕	⊕	+	+						✕								+

Tabella 8.2: Maxima des Lomb-Periodogramms als Funktion der Periodenlängen während LACE 98 für verschiedene im Rahmen dieser Arbeit erstellte Zeitreihen (Wolkenphysik: s_m maximale Übersättigung; n_{sg} Anzahl der wachsenden Wolkentropfen; optische Eigenschaften atmosphärischer Partikel: Extinktions-, Streu-, Absorptionskoeffizient und Single Scattering Albedo ($\sigma_e, \sigma_s, \sigma_a, \omega$) gemessen mit dem Aerosolphotometer (IMGF), dem Nephelometer (IFT) und berechnet aus den mikrophysikalischen Messungen mit dem Kugelschalenmodell (Index „M“); Aktivierungsparameter B_0 und rel. Feuchte f ; Massenmittel der Sedimentationsgeschwindigkeit \bar{u} ; ✕=Periode mit der höchsten Signifikanz $0,1 \gg Si$; ⊕=Periodenlänge mit der zweit- oder dritthöchsten Signifikanz $0,1 \gg Si$; += Signifikante Periode $0,1 > Si$; •=Periode vorhanden, aber $0,1 < Si$ (wird nur dann notiert, wenn ansonsten maximal eine signifikante Periode vorhanden ist)).

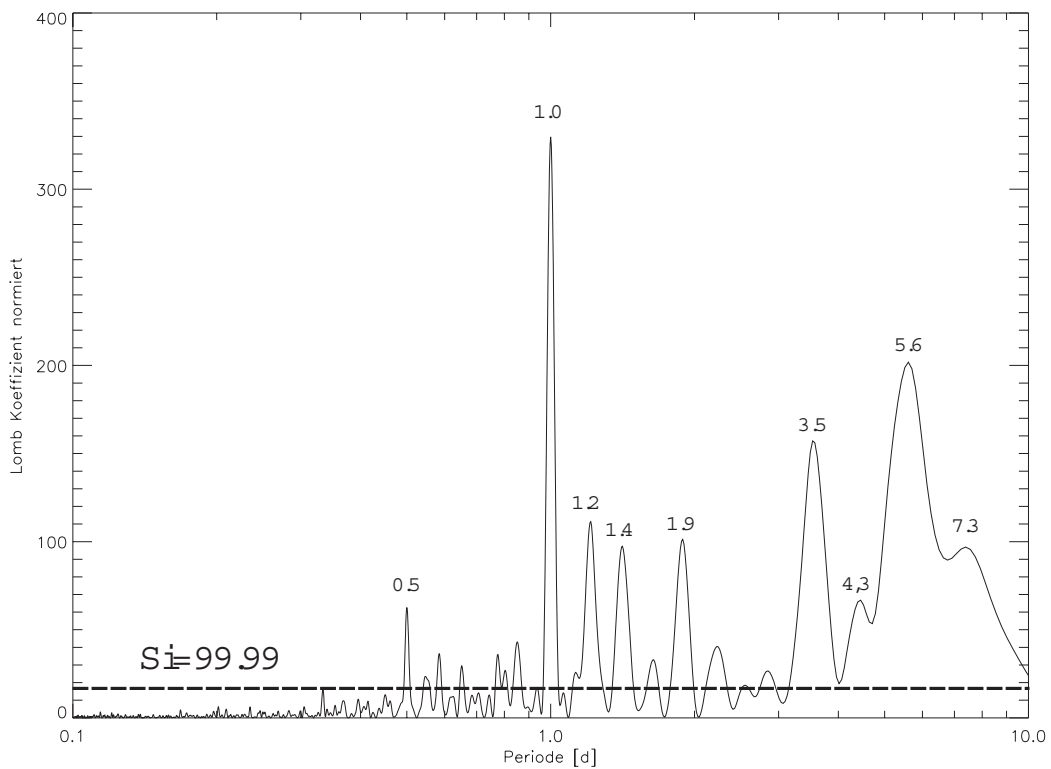


Abbildung 8.7: Lomb-Periodogramm für den Extinktionskoeffizienten feuchter atmosphärischer Partikel während LACE 98. Besonders deutlich zeichnet sich der tagesperiodische Einfluss der rel. Feuchte ab. Weitere hochsignifikante, zyklische Anteile sind insbesondere bei den Periodenlängen von 3,5 und 5,6 Tagen zu finden.

der Periodenlänge von einem Tag. Die während LACE 98 beobachtete Periodenlänge von 5,5 Tagen wurde ebenfalls von *Bundke* [1997] neben dem damals dominierenden Wochenzyklus beobachtet. Aufgrund des geringen Signifikanzniveaus von maximal 73% (Zeitreihe Frankfurt Flughafen [*Bundke*, 1997]) wurde diesem Zyklus gegenüber dem hochsignifikanten Wochenrhythmus zunächst keine Bedeutung zugewiesen. Eine natürliche Ursache für einen Wochenzyklus wurde von *Bundke* [1997] aufgrund von Phasenlage und Amplitude des Schätzers der Saisonfigur (Minimum am Wochenende) ausgeschlossen. Anders liegt der Fall bei den jetzt beobachteten drei- und fünftägigen Zyklen. Hier kommt unter Umständen der Einfluss planetarer atmosphärischer Wellen (Rossbywellen) als Ursache in Betracht. Dies wird im Folgenden näher untersucht.

8.5 These: Die optischen Eigenschaften trockener Partikel sind offensichtlich mit der Periodenlänge planetarer Wellen (Rossbywellen) verknüpft

Rossbywellen sind von entscheidender Bedeutung für großskalige meteorologische Prozesse. Als eine die absolute Vorticity erhaltende Bewegung (barotrope, reibungsfreie Atmosphäre ohne Divergenz des Horizontalwindes), kann die Rossbywelle mit Hilfe der so genannten β -Plane-Näherung⁵ beschrieben werden. Nach *Holton* [1992] berechnet sich die Phasengeschwindigkeit C_W , mit der die Rossbywelle sich fortbewegt, wie folgt:

$$C_W = v_u - \beta_R \frac{L^2}{4\pi} \Rightarrow P_W = \frac{L}{C_W} = \frac{L}{v_u - \beta_R \frac{L^2}{4\pi}} \quad (8.3)$$

C_W = Phasengeschwindigkeit der planetaren Welle

L = Wellenlänge

P_W = Am festen Ort beobachtbare Periodendauer für die Passage einer kompletten Wellenlänge

v_u = Zonalkomponente der Windgeschwindigkeit

β_R = Rossbyparameter = $1,47 \times 10^{-11}$ [rad s⁻¹m⁻¹] bei 50° geographischer Breite

⁵ **β -Plane-Näherung:** Näherung für die Breitenabhängigkeit des Coriolisparameters $f_C = f_{C0} + \beta_R y$ mit $\beta_R = \left(\frac{df_C}{dy}\right)_0 = \frac{2\Omega}{r_{\text{Erde}}} \cos \varphi_0 = \text{const.}$ Hierbei bezeichnet Ω die Winkelgeschwindigkeit der Erdrotation, r_{Erde} den mittleren Radius der Erde und φ_0 den Breitengrad des Breitenkreises, von dem y die Distanz in meridionaler Richtung angibt.

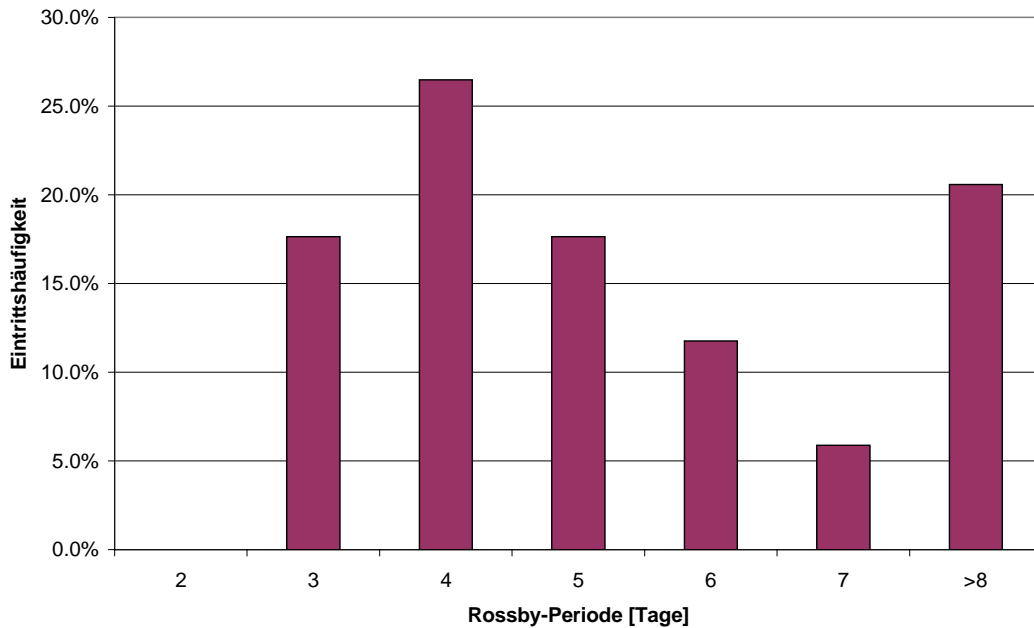


Abbildung 8.8: Eintrittshäufigkeit in [%] einer Rossbyperiodenlänge von (abgerundet) n Tagen während LACE 98.

Während LACE 98 wurden auf dem 500 hPa Niveau eine mittlere Wellenlänge von 5927 km und eine mittlere zonale Windgeschwindigkeit von 25 ms^{-1} beobachtet (Werte laut Amtsblatt des deutschen Wetterdienstes). Nach Gleichung 8.3 entspricht dies einer mittleren Periodendauer von 5,78 Tagen der Rossbywelle.

Abbildung 8.8 zeigt nun die Häufigkeitsverteilung der anhand der täglichen Höhenwetterkarte der Nordhemisphäre während LACE 98 berechneten Periodendauer der Rossbywelle (50° nördliche Breite)⁶. Diese Abbildung verdeutlicht, dass neben der mittleren Periodenlänge von 5,5 Tagen auch eine Vielzahl weiterer, sowohl niedrigerer als auch höherer Frequenzen mit den Rossbywellen verbunden sind. Frequenzen in diesem Bereich konnten auch im letzten Abschnitt innerhalb der Spektralanalyse beobachtet werden. Ein kausaler Zusammenhang zwischen der Rossbywelle und den zyklischen Komponenten ist allerdings damit noch nicht erwiesen. Aber einen starken Hinweis darauf, dass ein solcher Zusammenhang bestehen könnte, wird anhand der Abbildung 8.9 deutlich.

Aufgetragen ist hier die Zeitreihe des Streukoeffizienten trockener Partikel, gemessen mit dem Aerosolphotometer (primäre Ordinate). Dieser Zeitreihe wurde die Zeitreihe des Logarithmus der Rossbyperiodenlänge überlagert (Sekundärach-

⁶Die mittlere Wellenlänge wurde aus der planetaren Wellenzahl (500 hPa Niveau) berechnet. Die mittlere zonale Windkomponente wurde aus dem stromaufwärts befindlichen Maximalwert der zonalen Windkomponente multipliziert mit dem Faktor 0,75 abgeschätzt.

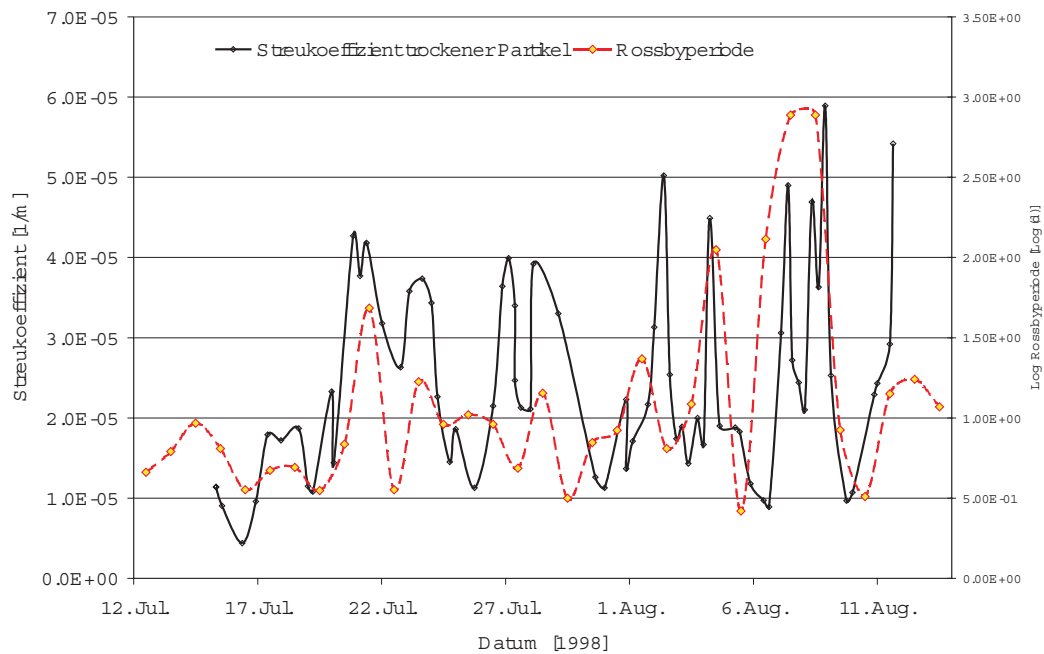


Abbildung 8.9: Direkter Zeitreihenvergleich des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel (gemessen mit dem Aerosolphotometer) und der Zeitreihe des Logarithmus der Rossbyperiode während LACE 98.

se). Sowohl Phase als auch beobachtete Amplitude beider Zeitreihen stimmen in der Abbildung verblüffend gut überein. Eine erste qualitative Erklärung dieses Phänomens kann in der Verbindung zwischen der großräumigen Zirkulation und der am Ort bevorzugt eintreffenden Luftpakete verschiedener Herkunft und Zugwege sein. Die trajektorienbezogene Analyse der Messwertverteilungen hat statistisch signifikante Unterschiede der zu erwartenden Messwerte zwischen verschiedenen Trajektorientypen gezeigt. Die großräumige Zirkulation – und hierbei insbesondere die Lage der Trogachsen und Keile der planetaren Wellen – steuert den Ferntransport, bestimmt somit den Trajektorientyp und daher auch den zu erwartenden Messwert, da mit jedem Trajektorientyp auch eine Messwertverteilungsfunktion verbunden ist. Weil in der Periodenlänge keine Information über die Phasenlage der Rossbywelle also z.B. über die Lage einer Trogachse vorliegt, kann mit diesem Erklärungsansatz nur eine direkte Verbindung zwischen den beobachteten zyklischen Komponenten der Zeitreihe des Streukoeffizienten und der Rossbyfrequenz erklärt werden. Da jedoch neben der Phasenlage auch die Amplitude in Abbildung 8.9 übereinstimmt, scheint folgender Erklärungsversuch erfolgreicher zu sein:

Je kürzer die Periodenlänge der Rossbywelle ist, umso schneller wandern die an sie gebundenen Tiefdruckgebiete ostwärts. Hiermit verbunden ist ein rascher Transport maritimer Luftmassen mit geringen Aerosolkonzentrationen auf den Kontinent. Durch hohe Transportgeschwindigkeiten wird ein Luftpaket nur gering mit kontinentalen Partikeln überprägt. Im Falle einer langen Periodendauer, verbunden mit einer fast stationären Lage bei der die Welle nur langsam ostwärts oder sogar retrograd⁷ fortschreitet, verbringt ein Luftpaket im Mittel längere Zeit über dem Kontinent. Hiermit verbunden sind hohe Aerosolpartikelkonzentrationen und somit auch hohe Werte des Streukoeffizienten. Die Akkumulation von Partikeln in einem Luftpaket über dem Kontinent ist keine lineare Funktion der Zeit. Vielmehr erwartet man bei vorhandenen Partikelsenken eine reziprok-exponentielle Zunahme (negativer Exponent der Exponentialfunktion) der Partikelanzahlkonzentration, die sich einem Gleichgewichtszustand nähert, bei dem sich die Auf- und Abbaurate die Waage halten. Neben der Partikelanzahlkonzentration trifft dieses Verhalten für jede Partikeleigenschaft $y(t)$ zu, die proportional zur Partikelkonzentration ist. In nullter Näherung somit auch für den hier betrachteten Streukoeffizienten.

Ein analoges Problem zu dem hier betrachteten zeitlichen Verlauf der Partikelkonzentration in der Atmosphäre wurde schon im Abschnitt über die in einer anatomischen Region eingelagerte Partikelmasse betrachtet und gelöst. Analog zu Gleichung 7.3 folgt als Lösung der zugehörigen inhomogenen Differenzial-

⁷**retrograde Bewegung:** Bewegung von Osten nach Westen, d.h. gegen die vorherrschende Luftströmung [Liljequist & Cehak, 1984]

gleichung (vgl. Gleichung 7.2) mit der Randbedingung $y(t = 0) = y_0$:

$$y(t) = -\frac{A_r}{\lambda_{cl}} + \exp(-\lambda_{cl}t) \left(y_0 + \frac{A_r}{\lambda_{cl}} \right) \quad (8.4)$$

λ_{cl} =Rate, mit der Partikel (hier aus der Atmosphäre) entfernt werden (die Definition entspricht einer Clearancerate, vgl. Gleichung 7.1)

A_r = Akkumulationsrate

Nimmt man an, dass die Raten λ_{cl} bzw. A_r konstant sind, stellt sich für den Grenzfall $\lim_{t \rightarrow \infty}$ ein Gleichgewichtszustand y_∞ ein. Aus Gleichung 8.4 folgt:

$$y_\infty = \frac{A_r}{\lambda_{cl}} \quad (8.5)$$

Nimmt man an, dass nach 5 Tagen die Hälfte der Partikel aus der Atmosphäre entfernt wurde, kann man die „Clearancerate“ der Partikel aus der Atmosphäre bestimmen. Es gilt:

$$\lambda_{cl} = -\ln 0.5/5\text{Tage} = 0.12[d^{-1}] \quad (8.6)$$

Betrachtet man den Streukoeffizienten, so wählt man für $y_\infty = 8 \times 10^{-5}[m^{-1}]$. Dieser Wert wurde so gewählt, dass er über dem Maximalwert des Streukoeffizienten während LACE 98 liegt. Für y_0 wird hier als erste Näherung ein durchschnittlicher minimaler Wert des Streukoeffizienten während LACE 98 gewählt $y_0 = 1 \times 10^{-5}[m^{-1}]$. Mit diesen Annahmen kann man nun Gleichung 8.4 verwenden, um den Streukoeffizienten der Partikel aus der am festen Ort beobachteten Rossbyperiodendauer P_W abzuschätzen. Hierzu setzt man in Gleichung 8.4 $t = P_W$ ein.

Berechnet man auf diese Weise den Streukoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand, beobachtet man einen (positiven) Offset des Mittelwertes des Streukoeffizienten von $1.85 \times 10^{-5}[m^{-1}]$. In Abbildung 8.10 sind nun die beiden Zeitreihen des gemessenen Streukoeffizienten (gemessen mit dem Aerosolphotometer) und der aus der Rossbyperiode abgeschätzte Streukoeffizient, abzüglich des beobachteten Offsets, aufgetragen.

Ebenso wie die in Abbildung 8.9, verblüfft die Übereinstimmung von Phasenlage wie Amplitude der beiden Zeitreihen. Jedoch wurde hier mit Gleichung 8.4 offensichtlich eine quantitative Verknüpfung von der beobachteten Periodendauer P_W und dem Streukoeffizienten der trockenen Partikel hergestellt.

Dieses Ergebnis ist neben den schon vorgestellten Ergebnissen der trajektorienbezogenen Analyse ein zusätzlich starker Hinweis dafür, dass hauptsächlich großskalige meteorologische Prozesse maßgeblich die Partikeleigenschaften in der Atmosphäre beeinflussen.

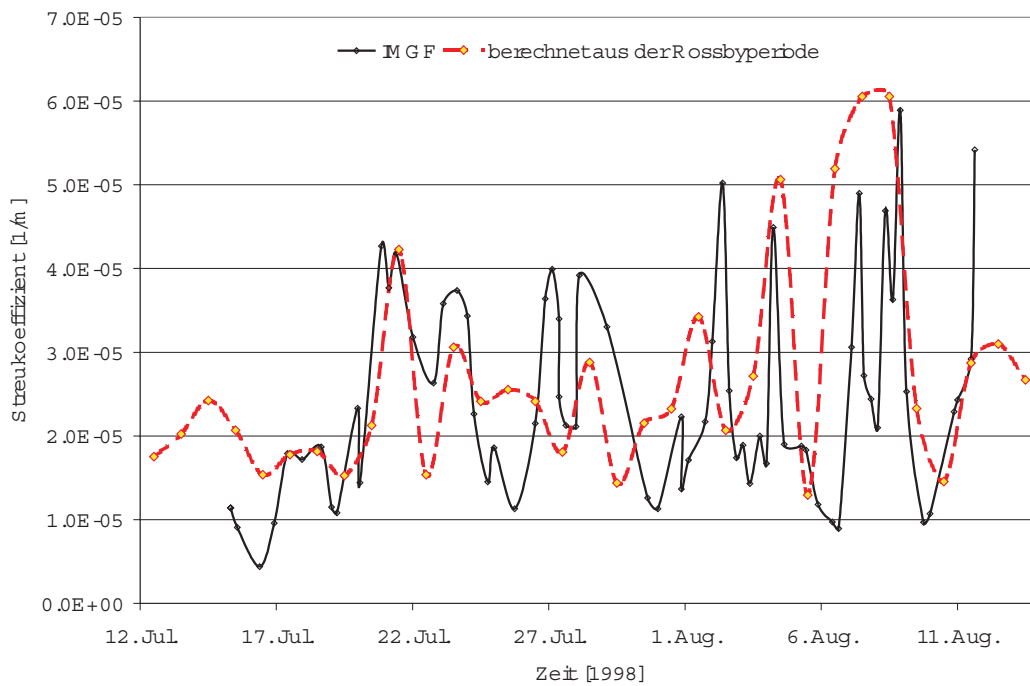


Abbildung 8.10: Direkter Zeitreihenvergleich des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel (gemessen mit dem Aerosolphotometer) und berechnet aus der Rossbyperiode nach Gleichung 8.4 während LACE 98. Letztere wurde um den beobachteten positiven Offset des Mittelwertes ($1,85 \times 10^{-5} [m^{-1}]$) gegenüber den Messungen mit dem Aerosolphotometer korrigiert.

Die hier aufgestellte These muss nun in weiteren Studien überprüft werden. Am Institut für Meteorologie und Geophysik der Universität Frankfurt steht hierzu eine Zeitreihe der optischen Eigenschaften trockener atmosphärischer Partikel, gemessen auf dem Kleinen Feldberg für die Dauer von 2 Jahren, zur Verfügung [Herrmann, 1998], die für die Überprüfung der hier aufgestellten These eine gute Datenbasis liefert.

8.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde eine umfangreiche statistische Analyse der in den vorangehenden Kapiteln vorgestellten Ergebnisse gezeigt. Als Basis dienten hierfür die in *Bundke* [1997] vorgestellten Verfahren und Ergebnisse. Im Folgenden werden die wichtigsten Ergebnisse noch einmal zusammengefasst:

- Die Verteilungsfunktionen der Messwerte des Extinktions-, des Streu- und des Absorptionskoeffizienten sowie der Single Scattering Albedo können mit Hilfe einer Weibull-Verteilung beschrieben werden.
- Die Verteilungsfunktionen verschiedener Messkampagnen (KLF 96, FFM 96, LACE 98, MACE 99 a&b) wurden miteinander verglichen. Es konnte im Rahmen einer trajektorienbezogenen Analyse der Daten gezeigt werden, dass großräumige Transportprozesse die optischen Eigenschaften der Partikel beeinflussen.
- Im Rahmen einer Zeitreihenanalyse wurden verschiedene hochsignifikante zyklische Komponenten der verschiedenen Messreihen identifiziert, insbesondere bei einer Periodenlänge von ca. 5.5 Tagen.
- Die hochsignifikanten zyklischen Anteile konnten in Verbindung zu der Periodendauer der planetaren Wellen (Rossbywellen) gebracht werden.
- Als These wurde eine quantitative Verknüpfung zwischen der an einem festen Ort beobachtbaren Periodendauer der planetaren Wellen und dem Streukoeffizienten hergestellt. Diese These muß nun durch weitere Forschungsarbeit bestätigt werden. Eine hierzu geeignete Messreihe der optischen Eigenschaften der Partikel im trockenen Zustand liegt am Institut für Meteorologie und Geophysik der Universität Frankfurt bereits vor [Herrmann, 1998].

Teil V

Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit wurde eingangs über den Begriff der erweiterten Schließung der optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel definiert. Hierunter versteht man das Zusammenfügen von verschiedenen Messungen zu einem konsistenten Bild der betrachteten Partikeleigenschaften. Darüber hinaus sollen die Messungen auch in anderen Teilgebieten der Aerosolphysik verwendbar sein, um so das konsistente Bild zu erweitern. Dieses so umschriebene Ziel konnte für die mikrophysikalischen und optischen Messergebnisse, die während des LACE 98 -Experimentes, einem vom Bundesministerium für Forschung und Bildung (Bmb+f) geförderten Schließungsexperiment, in Lindenberg (Brandenburg) rund 50 km südöstlich von Berlin im Juli und August 1998 erfasst wurden, erreicht werden. Die Messungen wurden erfolgreich zu einem konsistenten Datensatz und einem „Bild“ der Partikeleigenschaften zusammengefügt. Unter dem Begriff „Bild“ subsummiert sich hierbei nicht nur eine Charakterisierung der Variabilität und Abhängigkeit der Partikeleigenschaften, z.B. von der rel. Luftfeuchte, sondern darüber hinaus auch eine Charakterisierung der Beeinflussung verschiedener von den Eigenschaften der Partikel abhängiger Größen. Hierzu zählen Strahlungshaushaltsgrößen (Erwärmungsrate der Luft durch Absorption solarer Strahlung und die Volumenabsorption solarer Strahlung durch Partikel), wolkenphysikalische Größen (maximale Übersättigung der Wolkenluft während der Wolkenentstehung und Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen), die massengewichtete mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit von Partikeln und nicht zuletzt gesundheitsrelevante Größen, wie z.B. die vom Menschen beim Atmen aufgenommene und eingelagerte Partikelmasse. Nachfolgende Zusammenstellung soll nochmals die erzielten Ergebnisse zusammenfassen. Für eine detaillierte Darstellung der in den einzelnen Kapiteln erzielten Ergebnisse soll hier nur auf die jeweiligen Zusammenfassungen der einzelnen Kapitel verwiesen werden.

- Im Rahmen der direkten Schließung, wurden unterschiedliche Verfahren zur Bestimmung der optischen Eigenschaften der Partikel erfolgreich miteinander verglichen. Beteiligt waren bei diesem Vergleich folgende Methoden:

Partikel im trockenen Zustand:

- Aerosolphotometer (alle optischen Eigenschaften,)
- Nephelometer (Streukoeffizient)
- PSAP (Absorptionskoeffizient)
- IP-Methode (Absorptionskoeffizient)
- Telephotometer (Extinktionskoeffizient)

Partikel bei Umgebungsfeuchte:

- Telephotometer (Extinktionskoeffizient)
- horizontales Lidar (Extinktionskoeffizient)

Es zeigte sich, dass sich das Aerosolphotometer mit seinem schon aus der Theorie des Messverfahrens her begründeten konsistenten Satz aller optischen Eigenschaften als Referenzmethode während LACE 98 bewährte. Mit seiner Hilfe konnte nun auch die Gültigkeit einer empirischen Korrektur des PSAP nach *Bond et al.* [1999] für natürliche Aerosolpartikel bestätigt werden. Dem Anwender dieses Gerätes, das mit einer hervorragenden zeitlichen Auflösung von wenigen Minuten den Absorptionskoeffizienten bestimmt, stehen somit zwei unabhängig voneinander gewonnene Kalibrierungsfunktionen zur Verfügung, die innerhalb der Fehlergrenzen auch miteinander im Einklang stehen.

- Im Rahmen der indirekten Schließung wurde ein Modell entwickelt, mit dem auf Basis eines Kugelschalenmodells der Partikel aus Messungen der mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel den Extinktions-, den Streu- und den Absorptionskoeffizienten sowie die Single Scattering Albedo berechnet wurden. Mit Hilfe dieses Modells wurde der Feuchteeffekt der oben genannten optischen Eigenschaften berechnet. Mit diesen Ergebnissen konnten dann die Messwerte des Telephotometers feuchtekorrigiert, und mit den Messungen des Aerosolphotometers verglichen werden, wobei eine gute Übereinstimmung der Messreihen festgestellt werden konnte. Die beobachteten Unterschiede konnten auf Ernsteaktivitäten, die nur die Messungen des Telephotometers beeinflussten, zurückgeführt werden. Ein Vergleich der mit Hilfe des Modells auch direkt berechenbaren optischen Eigenschaften mit den direkten Messwerten der beteiligten Verfahren fiel ebenfalls positiv aus. Anhand aller Modellrechnungen wurde eine physikalisch motivierte Näherungsfunktion für den Feuchteeffekt des Extinktions- und des Streukoeffizienten als Funktion des Aktivierungsparameters bereitgestellt.

In Klimamodellen kann mit Hilfe der vorgestellten Näherungsfunktionen der Feuchteeffekt auf einfache Weise parametrisiert werden. Wenn man allerdings konkrete Messergebnisse miteinander vergleichen möchte, ist man auf eine vollständige Erfassung der mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel angewiesen.

- Im Teil IV der Arbeit wurden auf der Basis des zuvor vorgestellten Datensatzes und der hierfür entwickelten Verfahren (Algorithmen) weitere Auswertungen zu unterschiedlichen, für die Meteorologie interessanten Themengebieten, vorgestellt und ihre Ergebnisse charakterisiert.
- In Kapitel 6.1 wurde mit Hilfe von Auswertgleichungen aus den in dieser Arbeit erstellten Messungen des Sieben-Sensor-Bilanzphotometers und den Messungen des Aerosolphotometers die Volumenabsorptionsrate solarer Strahlung der bodennahen Partikel und die daraus resultierende Erwärmungsrate der Luft berechnet. Die Ergebnisse wurden mit Literaturwerten anderer Messkampagnen verglichen. Insbesondere konnte ein interessantes Ergebnis von *Hänel & Kastner* [2000] bestätigt werden. Mit Hilfe einer empirisch bestimmten linearen Funktion kann man die tägliche Erwärmung der Atmosphäre durch Absorption solarer Strahlung nahe dem Erdboden aus der maximalen Erwärmungsrate der Luft durch Absorption solarer Strahlung in Partikeln am Tag bestimmen.
- In Kapitel 6.2 wurden wolkenphysikalische Auswertungen des LACE 98 - Datensatzes vorgestellt. Für verschiedene Wolkenarten und den damit verbundenen unterschiedlichen Vertikalwindgeschwindigkeiten wurden die zu erwartende maximale Übersättigung der Wolkenluft und die Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen in Abhängigkeit von den aktuell gemessenen mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel berechnet.
- In Kapitel 6.3 wurde der LACE 98 -Datensatz hinsichtlich der massengewichteten mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit und der damit verbundenen Massenflussdichte der Partikel von der Atmosphäre zur Erdoberfläche untersucht. Dieser auch als „trockene Deposition“ bezeichnete Vorgang ist in ariden Gebieten einer der wichtigsten Partikelsenken. In feuchten Klimaten ist hingegen die „nasse Deposition“ die wichtigste Partikelsenke der Atmosphäre. Für die „trockene“ Deposition wurde eine entsprechende Näherungsfunktion vorgestellt, die den Feuchteeinfluss auf die massengewichtete mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit und die Massenflussdichte in Abhängigkeit von der rel. Feuchte und dem Aktivierungsparameter der Partikel parametrisiert. Diese Näherungsfunktion kann aufgrund ihrer einfachen Struktur direkt in globalen Aerosolmodellen verwendet werden.

- Nach diesen für die Meteorologie und die Klimatologie wichtigen Anwendungen wurde nun abschließend ein Modell für die Ablagerung von Partikeln in der menschlichen Lunge, gekoppelt mit einem Modell der Selbstreinigung der Lunge, vorgestellt und die Partikelbelastung durch eine Langzeitexposition für den LACE 98 -Datensatz berechnet. Für Toxikologen interessant sind hier die berechneten zu erwartenden systemisch wirkenden Tagesdosen trockener Partikelmasse sowie eine Abschätzung der nach einem Jahr zu erwartenden akkumulierten Partikelmasse in den verschiedenen Regionen der Lunge für verschiedene Probanden und Tätigkeitsmuster. Da die chemische Zusammensetzung der Partikel und somit auch ihre potentielle Toxizität von ihrer Größe abhängen, liegen die Ergebnisse auch als Funktion des Partikelradius vor.
- Anhand umfangreicher Sensitivitätsstudien der einzelnen Modelle wurden die durch die Fehler der beteiligten Eingangsgrößen bedingten Modellfehler untersucht. So wurde z.B. deutlich, wie wichtig bei bestimmten Modellrechnungen (z.B. bei der Berechnung des Extinktionskoeffizienten mit dem Kugelschalenmodell) die Bestimmung der Dichte und des aerodynamischen Formfaktors ist. Bei der Feuchtekorrektur der Schwächungskoeffizienten spielen dagegen beide Parameter nur eine untergeordnete Rolle. Anhand dieser Ergebnisse können Messkampagnen besser im Voraus geplant werden. In dieser Arbeit zeigte sich das schon lange bekannte Problem nochmals sehr eindringlich, dass die Dichte und der aerodynamische Formfaktor der atmosphärischen Partikel nur unzureichend bekannt sind. Es bleibt zu hoffen, dass zukünftige Forschungsarbeiten sich gezielt mit diesen wichtigen Parametern befassen.
- Kapitel 8 schließt mit einer meteorologisch orientierten, statistischen Analyse der verschiedenen Messungen und Modellergebnisse diese Arbeit ab. Es werden typische, zyklische Signaturen in den Zeitreihen identifiziert. Ferner wird in diesem Kapitel dargestellt, wie die zyklischen Komponenten durch großräumige synoptische Systeme (Rossbywellen) induziert werden. Ein wirklich verblüffendes Ergebnis dieser Studie ist, dass die optischen Eigenschaften der Partikel und hier explizit der Streukoeffizient der trockenen Partikel mit Hilfe eines physikalisch motivierten Ansatzes quantitativ aus der Rossbyperiodendauer berechnet werden kann. Weitere Studien müssen diese hier dargelegte These erst noch bestätigen.

Mit den hier vorgestellten Methoden können weitere Zeitreihen aus schon bestehenden Messreihen der mikrophysikalischen Messungen berechnet werden. Neben der Aufarbeitung von bestehenden Messungen ist aber auch ein zunächst

semi-operationeller Einsatz beispielsweise auf dem Kleinen Feldberg in Kooperation mit der HLUG (Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie) denkbar. Erste Kontakte wurden diesbezüglich schon aufgenommen.

Teil VI
Anhang

Anhang A

Technische Verbesserungen der Apparaturen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zahlreiche Verbesserungen an der Messapparatur vorgenommen.

A.1 Aerosolphotometer

Lampenjustierung: Es wurde eine optimierte Methode der Lampenjustierung des Aerosolphotometers entwickelt. Diese garantiert eine bessere rotationssymmetrische Beleuchtung der Probe als bisher.

Sensor zur Überwachung der Lampenintensität: Die Apparatur wurde um einen zusätzlichen Sensor erweitert, mit dessen Hilfe die Ausgangsleistung der verwendeten HMI-Lampe überwacht wird. Unter bestimmten Voraussetzungen ist so ggf. eine nachträgliche Korrektur der Messungen aufgrund von Intensitätsschwankungen der Lampen möglich.

Optimierung des Messprogramms: Die photometrische Vermessung wurde mit Hilfe einer optimierten Messstrategie von 1,5 Stunden Messzeit auf ca. 30 Minuten verkürzt.

A.2 Strahlungsmessungen

Schattenringkorrektur

Die Messung der diffusen Himmelsstrahlung mit einem Solarimeter mit Schattenring –einem Solarimeter, bei dem die direkte Sonnenstrahlung durch einen Schattenring ausgeblendet wird– bedarf mehrerer Korrekturen. Da durch den Schattenring nicht nur die direkte Sonnenstrahlung sondern auch ein Teil der diffusen Himmelsstrahlung abgeschattet wird, muss das Messsignal genau um diesen Anteil der

diffusen Strahlung nach oben hin korrigiert werden. Hierzu wird in einem theoretischen Ansatz die Himmelsstrahlung in einen isotropen und einen anisotropen Anteil aufgespalten (Warbinek [1993]). Der isotrope Anteil bestimmt sich aus dem Messsignal selbst und ist proportional zum effektiven Flächenanteil des durch den Ring abgeschatteten Himmelsraumes. Bei der Bestimmung des anisotropen Anteils hingegen muss eine Vielzahl von Parametern berücksichtigt werden. Hierzu gehören im Prinzip die Anzahl der Wolken, ihre Zusammensetzung, ihre Verteilung am Himmel, ihre optischen Eigenschaften, die optischen Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols und der Sonnenstand. Diese zum Teil hochvariablen Parameter können nur in stark vereinfachter Form mit vertretbarem Aufwand in eine Korrektur eingehen.

Die Korrekturformel für die diffuse Himmelsstrahlung H_d nimmt folgende Gestalt an.

$$H_d = H_{dg}(f_{\text{iso}} + f_{\text{aniso}}) \quad (\text{A.1})$$

Hierbei bezeichnet H_{dg} die mit dem Schattenring-Solarimeter gemessene diffuse Himmelsstrahlung, f_{iso} den Korrekturfaktor der diffusen Komponente und f_{aniso} den Korrekturfaktor der anisotropen Komponente der Himmelsstrahlung aus dem durch den Schattenring abgeschatteten Himmelsraum.

Zur Bestimmung von f_{aniso} nach Gleichung A.1 wurden Messungen der diffusen Himmelsstrahlung und der direkten Sonnenstrahlung auf dem Kleinen Feldberg (Taunus) und in München (GSF Gelände in Neuherberg) im Rahmen von Messkampagnen durchgeführt. Dabei kamen folgende Messinstrumente zum Einsatz:

1. 2π -Solarimeter mit Schattenring (Kipp & Zonen 911) (H_{dg})
2. 2π -Solarimeter (Kipp & Zonen 910) (Globalstrahlung)
3. Panzeraktinometer (Thies) (direkte Sonnenstrahlung)
4. Ångström-Pyrheliometer (Nr. 5) (direkte Sonnenstrahlung)

Das Panzeraktinometer wurde automatisiert. Hierzu wurde eine Schutternrichtung (Photoverschluß) samt Ansteuerelektronik entwickelt. Die Kalibrierung mit einem primären Strahlungsstandard (Ångström-Pyrheliometer) wurde am Institut in Frankfurt durchgeführt.

Eine Näherungsfunktion für f_{aniso} wurde in Form eines Polynoms fünften Grades mit Hilfe einer Regressionsanalyse bestimmt. Als Regressionsparameter wurde die Differenz von Globalstrahlung und diffuser Himmelsstrahlung (gemessen mit einem Solarimeter und dem Schattenringsolarimeter) normiert auf die Globalstrahlung verwendet (vgl. Abbildung A.1. Diese Näherungsfunktion stellt eine

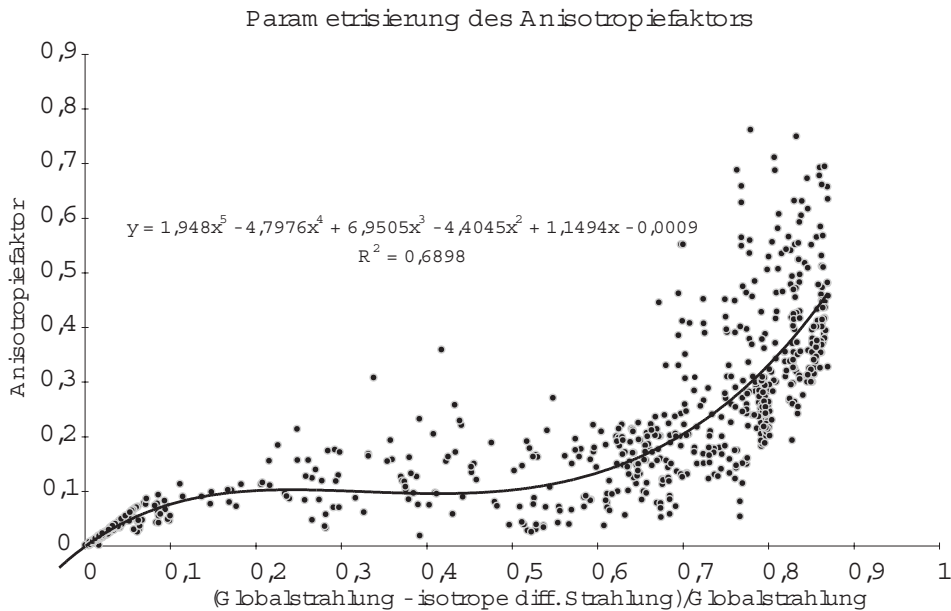


Abbildung A.1: Parametrisierung des Anisotropiefaktors als Funktion von zwei direkten Messgrößen

erhebliche Verbesserung der bisher verwendeten Anisotropiekorrektur nach Warbinek [1993] dar. Der verbleibende Fehler (Standardfehler der Regression) von $\pm 4,5\%$ bei der Bestimmung der diffusen Himmelstrahlung ist nach einer Sensitivitätsanalyse des Strahlungsübertragungsmodells von Komguem [1999] für eine weitere Analyse mit diesem Modell allerdings nicht tolerierbar.

Sieben-Sensor-Bilanzphotometer

Die Datenerfassung des Sieben-Sensor-Bilanzphotometers wurde ersetzt durch die Datenerfassungseinheit „COMBILOG“ der Fa. Friedrichs. Im Zuge dieser Umstellung musste auch das Auswerteprogramm „Sonne“ zur Auswertung auf einen PC portiert werden.

Automatisierung des Panzeraktinometers

Das Linke-Feussner-Panzeraktinometer zur Messung der direkten Sonnenstrahlung, wurde für den automatischen Einsatz im Feld umgerüstet. Hierzu wurde es auf einem Solar-Tracker montiert und mit einem vom Datenerfassungsgerät automatisch gesteuerten Shutter versehen. Sein Einsatz wurde während der Feldmesskampagnen MACE 99 erprobt. Dieses Gerät soll in Zukunft parallel zum

Schattenring-Pyranometer die Messungen des Sieben-Sensor-Bilanzphotometers um die Messung der direkten Sonnenstrahlung ergänzen.

Anhang B

Gleichungen

B.1 Korrektur der Größenverteilungsmessungen

Die Größenverteilung wurde während LACE 98 mit einem APS für Partikel mit Durchmessern größer 800nm und einem TDMPS für Partikel kleiner 800nm bestimmt. Diese Instrumente messen die Größenverteilung als Funktion des aerodynamischen- bzw. des Stokes-Radius. Die in dieser Arbeit vorgestellten Modelle benötigen als Eingangsparameter allerdings die Größenverteilung der Partikel bezüglich des Volumenäquivalentradius. Im Folgenden werden die notwendigen Konvertierungsgleichungen hergeleitet.

B.1.1 Konvertierung des aerodynamischen- in den Volumen-Äquivalentradius

Ansatz: In einem Impaktor werden Partikel mit gleichem Trägheitsparameter Ψ (und gleicher Froude-Zahl) gleich wahrscheinlich abgeschieden. Insbesondere ist der Trägheitsparameter Ψ_{ae} der abgeschiedenen Partikel mit dem aerodynamischen Radius r_{ae} gleich dem Trägheitsparameter Ψ der abgeschiedenen Partikel mit dem geometrischen Radius r :

$$\Psi = \Psi_{ae} \tag{B.1}$$

mit

$$\begin{aligned}
 \Psi &= \frac{u_c}{l_c} \mathcal{T} \\
 \Leftrightarrow \frac{u_c}{l_c} \mathcal{T} &= \frac{u_c}{l_c} \mathcal{T}_{ae} \\
 \leadsto \boxed{\mathcal{T} = \mathcal{T}_{ae}} & \quad (B.2)
 \end{aligned}
 \left| \begin{array}{l}
 u_c = \text{charakteristische Geschwindigkeit d.P.}^a \\
 l_c = \text{charakteristische Länge d.P.} \\
 \mathcal{T} = \text{hydrodynamische Relaxationszeit d.P.} \\
 \hline
 \text{}^a \text{d.P.=der Partikel}
 \end{array} \right.$$

Die hydrodynamische Relaxationszeit \mathcal{T} eines realen Partikels mit dem Volumenäquivalentradius r und der Dichte ρ ist also gleich der hydrodynamischen Relaxationszeit des idealisierten Partikels mit der Dichte $\rho_{ae} = 1$ und dem aerodynamischen Radius r_{ae} . Unter Verwendung von:

$$\mathcal{T} = \frac{2\rho r^2 (1 + K_n [A + Q \exp(-B/K_n)])}{9\kappa\eta_L (1 + \beta R_e^\gamma) (1 + \frac{M_a}{2})} \quad (B.3)$$

folgt somit:

$$1 = \frac{\mathcal{T}}{\mathcal{T}_{ae}} = \frac{\frac{2\rho r^2 (1 + K_n [A + Q \exp(-B/K_n)])}{9\kappa\eta_L (1 + \beta R_e^\gamma) (1 + \frac{M_a}{2})}}{\frac{2\rho_{ae} r_{ae}^2 (1 + K_{nae} [A + Q \exp(-B/K_{nae})])}{9\kappa_{ae}\eta_L (1 + \beta R_{eae}^\gamma) (1 + \frac{M_a}{2})}}$$

Partikeleigenschaften:

K_n =Knudsenzahl= $\frac{\lambda_l}{r}$

λ_l =mittlere freie Weglänge

r =Radius des Partikels

r_e =Aerodynamischer Radius d.P.

A, Q, B = Konstanten

R_e =Reynoldszahl

M_a =Machzahl

η_L =Kinematische Zähigkeit

κ =Aerodynamischer Formfaktor

$\kappa_{ae}=1$ aerodynamischer Formfaktor einer

Kugel

$\rho_{ae}=1$ [gcm⁻³]

$\beta \approx 0,13$

$\gamma \approx 0,85$

Mit den Annahmen:

$$\begin{aligned}
 (1 + K_n [A + Q \exp(-B/K_n)]) &\approx (1 + K_{nae} [A + Q \exp(-B/K_{nae})]) \\
 (1 + \beta R_e^\gamma) &\approx (1 + \beta R_{eae}^\gamma)
 \end{aligned}$$

folgt:

$$\boxed{\frac{r}{r_{ae}} = \sqrt{\frac{\rho_{ae}\kappa}{\rho\kappa_{ae}}}} \quad (B.4) \quad \left\{ \begin{array}{l} \rho_{ae} \stackrel{\text{def}}{=} 1 \left[\frac{\text{g}}{\text{cm}^3} \right] \\ \kappa_{ae} \stackrel{\text{def}}{=} 1 \\ \kappa = \begin{cases} 1, 2 & | \ r < 1\mu\text{m} \\ 1, 1 & | \ r > 1\mu\text{m} \end{cases} \\ \rho = \text{Dichte des Partikels} \end{array} \right.$$

Da die Die Größenverteilung für Partikel im trockenen Zustand bestimmt wird, gilt hier $\rho = \rho_0$.

B.1.2 Dichte des „feuchten“ Partikels

Im Folgenden soll die Dichte des „feuchten“ Partikels ρ_{Pf} berechnet werden. ρ_{Pf} wird z.B. bei der Berechnung der Sedimentationsgeschwindigkeit benötigt. Die Dichte eines Partikels ist folgendermaßen definiert:

$$\begin{aligned} \rho_{Pf} &= \frac{M}{V} = \frac{M_{p0} + M_w}{V} \\ &= \frac{\rho_0 V_0 + \rho_W V_w}{V} = \frac{\rho_0 r_0^3 + \rho_W (r^3 - r_0^3)}{r^3} \\ &= \left(\frac{r}{r_0} \right)^{-3} (\rho_0 - \rho_W) + \rho_W \end{aligned} \quad \left\{ \begin{array}{l} \rho_{Pf} = \text{Dichte des „feuchten“ Partikels} \\ \rho_W = \text{Dichte des Wassers} \\ M_{p0} = \text{Trockenmasse des Partikels} \\ M_w = \text{Masse des Wassers} \\ r_0 = \text{Radius des „trockenen“ Partikels} \\ r = \text{Radius des „feuchten“ Partikels} \\ V = \text{Volumen des Partikels} \end{array} \right.$$

Zur Bestimmung des Wachstumsfaktors der Partikel in Abhängigkeit von der relativer Feuchte $\frac{r(f)}{r_0}$ wird ein vereinfachtes Gleichgewichts-Wachstums-Modell (ohne Krümmungskorrektur) verwendet (mit $B_f = B_0 a_w$; und $a_w = f$ vgl. 5.5 auf Seite 81)

$$\frac{r(f)}{r_0} \simeq \sqrt[3]{1 + \frac{B_0 f}{\ln(1/f)}} \quad (B.5) \quad \left\{ \begin{array}{l} B_f \text{ Hygroskopizitätsparameter d.P.} \\ B_0 \text{ Aktivierungsparameter d.P.} \\ a_w \text{ Aktivität des Wassers} \end{array} \right.$$

Einsetzen liefert:

$$\boxed{\rho_{Pf} \simeq \left(1 + \frac{B_0 f}{\ln(1/f)} \right)^{-1} (\rho_0 - \rho_W) + \rho_W} \quad (B.6)$$

B.2 DMPS Korrektur: Konvertierung des Stokes-Radius in den Volumenäquivalentradius

Die Größenverteilung der Partikel $r < 800\text{nm}$ wird mit Hilfe zweier DMPS-Systeme als Funktion des Stokes-Radius bestimmt. Die für die Verwendung der Messdaten in den Modellen notwendige Radiuskonvertierung der Größenverteilung in Volumenäquivalentradien wird im Folgenden vorgestellt.

Ansatz: Innerhalb des differentiellen Mobilitäts-Analysegerätes (DMA) halten sich die an dem Partikel angreifenden Kräfte der Reibungskraft, der elektrostatische Kraft und der Schwerkraft die Waage. Die Bewegungsgleichung für ein Partikel im DMA lautet entsprechend:

$$\frac{d\vec{v}}{dt} = -\frac{\vec{v} - \vec{v}_a}{\mathcal{T}} - g\vec{e}_z + \hat{e}\vec{E} - \mu\vec{v} = 0 \quad (\text{B.7})$$

\vec{E} = Elektrische Feldstärke im DMA

g = Erdbeschleunigung

μ = relative Änderung der Masse mit der Zeit; hier $\mu=0$

\hat{e} = Ladung pro Masseneinheit

Einsetzen der hydrodynamischen Relaxationszeit \mathcal{T} liefert für das Kräftegleichgewicht mit e =Elementarladung:

$$-\underbrace{(\vec{v} - \vec{v}_a)}_{\vec{v}_{rel}} \frac{9\kappa\eta_L (1 + \beta R_e^\gamma) \left(1 + \frac{M_a}{2}\right)}{2\rho_0 r^2 (1 + K_n [A + Q \exp(-B/K_n)])} - g\vec{e}_z + \frac{3n_e e}{4\pi r^3 \rho_0} \vec{E} = 0 \quad (\text{B.8})$$

$$R_e = \frac{2r\rho_{L0} |v_{rel}|}{\eta_{L0}}$$

$$\beta R_e^\gamma \ll 1$$

$$M_a = \frac{|v_{rel}|}{c_a} \ll 1$$

Mit den hier verwendeten Näherungen folgt:

$$\frac{9}{2} \frac{\vec{v}_{rel} \kappa \eta_L}{\rho_0 r^2 (1 + K_n [A + Q \exp(-B/K_n)])} = \frac{3}{4} \frac{n_e e}{4\pi r^3 \rho_0} \vec{E} \quad (\text{B.9})$$

\Leftrightarrow

$$\frac{6\pi \vec{v}_{rel} \kappa \eta_L}{n_e e} = \frac{\left(1 + K_n \left[A + Q \exp\left(-\frac{B}{K_n}\right)\right]\right)}{r} \vec{E} \quad (\text{B.10})$$

Dieses Gleichgewicht gilt ebenso, wenn man den aerodynamischen Formfaktor κ_k und dem Stokes-Radius r_k des betrachteten Partikels in Gleichung B.10 einsetzt. Hieraus folgt für den Quotienten $\frac{\kappa}{\kappa_k}$ unter Berücksichtigung von $K_n = \lambda_l/r$:

$$\frac{\kappa}{\kappa_k} = \frac{\left(1 + \frac{\lambda_l}{r} \left[A + Q \exp\left(-\frac{Br}{\lambda_l}\right) \right]\right) r_k}{\left(1 + \frac{\lambda_l}{r_k} \left[A + Q \exp\left(-\frac{Br_k}{\lambda_l}\right) \right]\right) r} \quad (\text{B.11})$$

Diese Gleichung wird nun numerisch nach $\frac{r_k}{r}$ gelöst. Setzt man $A = \frac{5}{4}, Q = \frac{1}{2}, B = 1$ und für die mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle $\lambda_l = 1,5 \times 10^{-7} [\text{m}]$, so gibt das Verhältnis $\frac{r_k}{r}$ den Korrekturfaktor zwischen dem Stokes-Radius (r_k ; mit $\kappa_k = 1$) und dem geometrischen Volumenäquivalentradius (hier r mit dem aerodynamischen Formfaktor κ) an.

B.3 Bestimmung des Aktivierungsparameters

Der Aktivierungsparameter B_0 der Partikel spielt eine entscheidende Rolle bei der Modellierung des Feuchtewachstums der Partikel. Innerhalb des Wachstumsmodells repräsentiert er die chemischen Eigenschaften der Partikel. Sein Wert kann nun auf zwei verschiedene Weisen aus den während LACE 98 gemessenen Partikeleigenschaften abgeleitet werden. Beide Verfahren werden im Folgenden vorgestellt.

B_0 berechnet aus der chemischen Zusammensetzung

Folgende Messwerte und Literaturwerte stehen für die Berechnung des Aktivierungsparameters aus der chemischen Zusammensetzung der Partikel zur Verfügung:

- ρ_0 = $1,93 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ Dichte der Partikel im trockenen Zustand
- ρ_W = $0,99 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ Dichte des Wassers
- $M_{f=0,6}$ = Massenkonzentration der Partikel bei der rel. Feuchte 0,6 (Messwert)
- M_I = Massenkonzentration der Ionen „I“ (Messwert)
- m_I = Molmasse der Ionen „I“
- $X_{f=0,6}$ = 0,513; mit $B(f = 0,6) = B_0 X_{f=0,6}$ [Hänel ,private Mitteilungen] Hierbei handelt es sich um einen Mittelwert für ansteigende und abfallende rel. Feuchte
- M_{p0} = Massenkonzentration der trockenen Partikel

Für den Aktivierungsparameter gilt:

$$B_0 = \frac{\rho_0}{\rho_W} \frac{m_w}{M_{p0}} \sum_I \frac{M_I}{m_I} \quad (\text{B.12})$$

Während LACE 98 wurde M_{p0} nicht bestimmt. Es liegen nur Messungen der Massenkonzentrationen $M_{f=0,6}$ bei der rel. Feuchte $f = 0,60$ vor. Es gilt:

$$\begin{aligned} \frac{M_{f=0,6}}{M_{p0}} &= \frac{M_{p0} + M_w(f=0,6)}{M_{p0}} = 1 + \frac{\rho_W \left(\frac{4}{3} \pi (r_{f=0,60}^3 - r_0^3) \right)}{M_{p0}} \\ &= 1 + \frac{\rho_W}{\rho_0} \left(\left(\frac{r_{f=0,60}}{r_0} \right)^3 - 1 \right) \end{aligned}$$

Einsetzen der Kelvin-Köhler-Gleichung (ohne Kümmersterm) bei $f = 0,6$ in der Form:

$$\left(\frac{r_{f=0,60}}{r_0} \right)^3 - 1 = - \frac{B_f}{\ln(0,60)}$$

unter der Annahme $B_f = B_0 X_{f=0,6}$ liefert:

$$\frac{M_{f=0,6}}{M_{p0}} = 1 + \frac{\rho_W}{\rho_0} \left(\frac{-B_0 X_{f=0,6}}{\ln 0,6} \right) \quad (\text{B.13})$$

Einsetzen von Gleichung B.13 in B.12 liefert als Endergebnis:

$$\boxed{\frac{1}{B_0} = \frac{\rho_W}{\rho_0} \frac{M_{f=0,6}}{m_w} \frac{1}{\sum_I \frac{M_I}{m_I}} + \frac{\rho_W X_{f=0,6}}{\rho_0 \ln 0,6}} \quad (\text{B.14})$$

Zum Abschätzen des Fehlers von B_0 wird die Gaußsche Fehlerfortpflanzung auf Gleichung B.14 angewendet. Es ergibt sich folgender Fehler von B_0 bezüglich der Eingangsparameter ρ_0 und $X_{f=0,6}$:

$$\boxed{\Delta B_0 = \sqrt{\left(- (B_0)^2 \Delta \left(\frac{1}{B_0} \right) \right)^2}} \quad (\text{B.15})$$

mit

$$\Delta \left(\frac{1}{B_0} \right) = \sqrt{\left(\frac{1}{B_0 \rho_0} \Delta \rho_0 \right)^2 + \left(\frac{1}{B_0} + \frac{\rho_W}{\rho_0} \left(\frac{X_{f=0,6} - 1}{\ln f^{-1}} \right) \right)^2 \Delta X_{f=0,6}^2}$$

B_0 berechnet aus dem mit dem HTDMA gemessenen Wachstumsfaktor bei der rel Feuchte $f=0,9$

Mit dem HTDMA wurde der Wachstumsfaktor $r(f = 0,9)/r_0$ für Partikel mit verschiedenen Trockenradien r_0 bei der relativen Feuchte $f = 0,9$ bestimmt. Löst man die Kelvin-Köhler-Gleichung 5.6 nach B_f auf, so erhält man bei $f = 0,9$:

$$B_f = \left(\left(\frac{r}{r_0} \right)^3 - 1 \right) \left(\frac{A_{kf}}{r r_0} - \ln 0,9 \right) \quad (\text{B.16})$$

Unter Verwendung der Näherung $B_f = B_0 a_w$ mit $a_w = \exp \left(-\frac{B_f}{\left(\frac{r}{r_0} \right)^3 - 1} \right)$ folgt dann für den Aktivierungsparameter:

$$B_0 = \frac{B_f}{\exp \left(-\frac{B_f}{\left(\frac{r}{r_0} \right)^3 - 1} \right)} \quad (\text{B.17})$$

Anhang C

Tabellen: Sensitivitätsanalyse des Kugelschalenmodells

In den nachfolgenden Tabellen sind die mittleren prozentualen Modellfehler des Extinktions-, Streu-, Absorptions- und Rückstreuoeffizienten der Partikel in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f angegeben. In der jeweils ersten Spalte findet sich der prozentuale Gesamtfehler, der aus den in der untersten Zeile notierten Messfehlern der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der Fehler der einzelnen Einflussgrößen ist in den folgenden acht Spalten angegeben. (B_0 Aktivierungsparameter, $n - ik$ komplexer Brechungsindex der trockenen Partikel, f_{sm} Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz, f rel. Feuchtigkeit, κ_0 Aerodynamischer Formfaktor und ρ_0 Dichte der trockenen Partikel und $\frac{dn_s}{d \log r_0}$ Größenverteilung). In der letzten Spalte ist zusätzlich der rel. Einfluss der Radiuskorrektur der APS/DMPS-Größenverteilungsmessung angegeben. Dieser Wert geht nicht in den Gesamtfehler ein!

f	Gesamtfehler ΔB_0	$\Delta \sigma_{eM}$ [%]										Δ korrektur	Anzahl
		ΔT	Δn_0	Δk_0	Δf_{sm}	Δf	$\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$	Δk_0	$\Delta \rho_0$	10%	10%		
0	35,0	0,0	0,0	23,1	0,4	0,0	0,0	0,0	10,0	24,0	4,0	75,0	3236
0,1 - 0,2	33,2	0,4	0,0	21,8	0,8	4,1	0,1	10,0	22,6	4,1	71,3	41	
0,2 - 0,3	30,7	0,8	0,0	19,2	0,6	1,3	0,2	10,0	21,7	4,7	66,7	157	
0,3 - 0,4	34,2	1,3	0,0	21,6	0,5	2,0	0,3	10,0	24,5	3,9	76,0	414	
0,4 - 0,5	32,3	2,2	0,0	19,2	0,4	1,5	0,6	10,0	23,8	4,2	75,0	502	
0,5 - 0,6	32,3	3,1	0,0	18,4	0,4	1,5	1,0	10,0	24,3	3,6	75,9	483	
0,6 - 0,7	30,7	4,5	0,0	14,7	0,2	1,5	2,0	10,0	24,4	3,8	75,2	445	
0,7 - 0,8	29,8	6,3	0,0	11,1	0,2	1,2	4,8	10,0	24,5	3,5	75,5	535	
0,8 - 0,9	32,4	8,6	0,1	7,0	0,1	0,9	13,1	10,0	25,6	2,7	78,4	381	
0,9 - 0,95	43,8	9,8	0,1	2,5	0,0	0,3	32,3	10,0	25,9	1,8	76,8	278	
Fehler der Eingangsgröße	10%	5%	6%	10%	10%	10%	1%	10%	10%	10%			

Tabelle C.1:

f	$\Delta\sigma_{sM}$ [%]											Anzahl
	Gesamtfehler	ΔB_0	ΔT	Δn_0	Δk_0	Δf_{sm}	Δf	$\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$	$\Delta \kappa_0$	$\Delta \rho_0$	Δ Radius-korrektur	
0	35,1	0,0	0,0	22,6	1,3	0,0	0,0	10,0	24,6	4,0	80,1	3236
0,1 - 0,2	34,3	0,5	0,0	23,3	1,0	0,7	0,1	10,0	23,1	5,1	77,5	41
0,2 - 0,3	31,2	0,9	0,0	19,6	0,9	1,4	0,2	10,0	22,0	5,1	72,5	157
0,3 - 0,4	34,2	1,4	0,0	20,8	0,9	1,2	0,4	10,0	25,2	3,3	79,7	414
0,4 - 0,5	33,2	2,7	0,0	19,3	0,9	1,4	0,8	10,0	24,8	4,5	80,2	502
0,5 - 0,6	32,1	3,7	0,0	17,3	0,8	1,0	1,3	10,0	24,8	3,6	80,0	483
0,6 - 0,7	30,2	5,4	0,0	12,5	0,7	0,7	2,4	10,0	24,9	3,7	78,6	445
0,7 - 0,8	29,9	7,2	0,0	9,6	0,5	0,3	5,3	10,0	25,0	3,4	77,8	535
0,8 - 0,9	32,9	9,1	0,1	5,6	0,3	0,2	13,9	10,0	25,9	2,6	79,6	381
0,9 - 0,95	44,8	10,1	0,1	1,7	0,2	0,3	33,5	10,0	26,0	1,7	77,3	278
Fehler der Eingangsgröße	10%	5%	6%	10%	10%	10%	1%	10%	10%	10%		

Tabelle C.2:

f	Gesamtfehler ΔB_0	$\Delta \sigma_{aM}$ [%]										Δ korrektur	Anzahl
		ΔT	Δn_0	Δk_0	Δf_{sm}	Δf	$\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$	Δk_0	$\Delta \rho_0$	10%	10%		
0	35,9	0,0	0,0	25,8	6,1	0,0	0,0	10,0	21,6	4,4		55,3	3236
0,1 - 0,2	35,1	0,3	0,0	18,1	5,8	17,5	0,1	10,0	21,5	2,6		56,3	41
0,2 - 0,3	28,2	0,6	0,0	10,0	5,8	12,5	0,1	10,0	20,1	7,5		54,7	157
0,3 - 0,4	36,9	3,9	0,0	23,3	5,9	16,0	1,3	10,0	20,3	6,4		58,9	414
0,4 - 0,5	35,8	2,0	0,0	21,3	6,0	16,0	0,8	10,0	20,8	5,1		56,5	502
0,5 - 0,6	36,9	1,2	0,0	24,1	6,2	14,5	1,0	10,0	20,7	5,5		55,9	483
0,6 - 0,7	38,3	1,3	0,0	26,3	6,1	14,7	0,9	10,0	20,4	5,8		54,3	445
0,7 - 0,8	39,8	1,0	0,0	28,4	6,3	15,2	0,9	10,0	20,2	4,7		55,3	535
0,8 - 0,9	42,6	1,0	0,0	30,1	6,2	17,8	1,2	10,0	21,3	4,1		59,0	381
0,9 - 0,95	43,1	0,8	0,0	30,0	6,0	19,2	0,9	10,0	21,3	3,6		56,6	278
Fehler der Eingangsgröße	10%	5%	6%	10%	10%	1%	10%	10%	10%				

Tabelle C.3:

f	$\Delta\sigma_{bM}$ [%]											Anzahl
	Gesamtfehler	ΔB_0	ΔT	Δn_0	Δk_0	Δf_{sm}	Δf	$\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$	$\Delta \kappa_0$	$\Delta \rho_0$	Δ Radius-korrektur	
0	33,2	0,0	0,3	21,6	1,6	0,0	0,0	10,0	22,6	4,6	94,3	3236
0,1 - 0,2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
0,2 - 0,3	59,8	1,9	0,0	20,1	1,9	8,0	0,1	10,0	20,2	51,0	81,0	41
0,3 - 0,4	53,6	3,5	0,0	16,7	2,3	14,9	0,3	10,0	26,2	39,5	54,8	157
0,4 - 0,5	73,9	33,9	0,0	32,4	4,2	26,7	19,6	10,0	41,0	19,0	51,1	414
0,5 - 0,6	65,6	29,9	0,0	37,0	1,6	20,2	14,8	10,0	26,4	24,7	58,3	502
0,6 - 0,7	48,4	11,0	0,0	30,5	0,8	10,5	5,8	10,0	26,0	19,2	54,9	483
0,7 - 0,8	42,7	13,7	0,0	24,7	0,5	5,9	7,9	10,0	23,9	16,1	54,6	445
0,8 - 0,9	31,6	12,4	0,0	13,3	0,4	2,1	10,0	10,0	17,8	12,0	52,4	535
0,9 - 0,95	29,5	10,6	0,1	3,0	0,3	1,7	12,7	10,0	19,7	9,7	54,4	381
0,95 -	39,6	10,0	0,1	4,8	0,3	1,3	29,8	10,0	20,6	5,6	55,4	278
Fehler der Eingangsgröße	10%	5%	5%	6%	10%	10%	1%	10%	10%	10%		

Tabelle C.4:

Abbildungsverzeichnis

1.1	Die jährliche mittlere globale Energiebilanz für das System Erde – Atmosphäre. Zahlenwerte geben den relativen Anteil der einzelnen Energieflüsse in Prozent der einfallenden Energie durch solare Strahlung (=100%) an. Abbildung aus [Graedel & Crutzen, 1994].	9
1.2	Albedo einer Wolke in Abhängigkeit von ihrer optischen Dicke bei einem Zenitwinkel der Sonne von $\theta_{\text{Sonne}}=0^\circ$; $\lambda = 0,5\mu\text{m}$; Abbildung nach Salby [1996]	14
1.3	Kritische Single Scattering Albedo der Partikel (ω_{krit}) als Funktion der Erdbodenalbedo bei verschiedenen Rückstreuanteilen (β) der Partikel in den oberen Halbraum.	19
2.1	Schematischer Aufbau des Aerosolphotometers	34
2.2	Schematischer Aufbau des integrierenden Nephelometers TSI 3563 der Firma TSI. Abbildung modifiziert nach Anderson et al. [1996]	38
2.3	Systematischer Fehler des Nephelometers als Funktion des Größenparameters des volumengewichteten mittleren Radius der Größenverteilung: Aufgetragen ist das Verhältnis (σ_p/σ_k) von gemessenem Streukoeffizient zu einem mit Hilfe der Mie-Theorie berechneten Streukoeffizienten bei den Wellenlängen 450, 550 und 700nm über dem Größenparameter $\alpha_P=\pi D_{gv}\lambda^{-1}$. Bei den Rechnungen wurde eine Lognormalverteilung der Größenverteilung der Partikel angenommen mit dem volumengewichteten Mittelwert des Radius D_{gv} der Größenverteilung. Die zusätzlichen Skalen der Abszisse zeigen die zugehörigen volumengewichteten mittleren Durchmesser der vorausgesetzten Größenverteilungen für die Wellenlängen ($\lambda = \{400, 550, 700\text{nm}\}$) [Anderson et al., 1996]	40
2.4	Schematischer Aufbau des IP-Photometers	42
2.5	Schematischer Aufbau des Particle Soot Absorption Photometers (PSAP) Abbildung nach Bond et al. [1999]	44

2.6	Schematischer Aufbau und Messanordnung des Telephotometers im Feldeinsatz.	46
3.1	Schematischer Aufbau des TDMPS (Twin Differential Mobility Particle Sizer). Der Aufbau der beiden DMA (Differential Mobility Analyser) kann ebenfalls dieser Abbildung entnommen werden. Die eingezeichneten Trajektorien der Partikel beschreiben die erwarteten Wege der Partikel im elektrischen Feld im Inneren des DMA zwischen Kathode und Gehäusemantel. Kritische Düsen und Nadelventile dienen dazu, den Volumenfluss der Proben konstant zu halten.	53
3.2	Schematischer Aufbau eines Kondensationskernzählers (CPC). Partikel werden einer mit Butanol übersättigten Luft ausgesetzt. Das Butanol kondensiert an den Partikeln und lässt diese stark anwachsen. Mit einem optischen Detektor kann anschließend die Anzahlkonzentration der Partikel bestimmt werden.	55
4.1	Vergleich des mit dem Volumenfluss gewichteten Absorptionskoeffizienten mit dem ungewichteten Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel, gemessen mit dem PSAP. Abweichungen von der 1:1-Korrelation zeigen den Einfluss des nicht konstanten Flusses durch den Filter bei der Probenahme für das Aerosolphotometer. Die Steigung von $1,004 \pm 0,02$ ($R^2 = 0,98$) zeigt, dass dieser Einfluss während LACE 98 gering ist. Hiernach verursacht die Verwendung des nicht mit dem Volumenfluss gewichteten, zeitlichen Mittelwertes keinen statistisch nachweisbaren systematischen Fehler.	64
4.2	Vergleich der mit dem Aerosolphotometer (IMGF), dem PSAP und der integrierenden Platte (UniWien) gemessenen Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel während LACE 98	66
4.3	Streudiagramm des PSAP-Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel mit Korrektur nach <i>Bond et al.</i> [1999] und des mit dem Aerosolphotometer gemessenen Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel. Hierbei wurden die PSAP-Messwerte über die Sammelintervalle der Filter für das Aerosolphotometer gemittelt.	67
4.4	Zeitreihen des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel gemessen mit dem Nephelometer und dem Aerosolphotometer: In dieser Darstellung wurden Nephelometermessungen jeweils über die Dauer von 12 Stunden gemittelt.	70

-
- 4.5 Streudiagramm des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel gemessen mit dem Nephelometer und dem Aerosolphotometer: Die Messwerte des Nephelometers wurden zeitlich entsprechend der Filterbelegzeiten für das Aerosolphotometer gemittelt. 71
- 4.6 Vergleich der Single Scattering Albedo (ω) atmosphärischer Partikel gemessen mit dem Aerosolphotometer (ω -IMGF) und berechnet aus Nephelometer- und PSAP- Messungen (ω -IfT). 73
- 4.7 Messungen des Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel bei Umgebungsfeuchte des Telephotometers und des horizontalen Lidars. Die Parallelmessungen fanden zwischen dem 5. und 7. August 1998 statt. Das Lidar der Universität München war in Lindenberg auf einem Hügel ca. 50 m. oberhalb der Umgebung stationiert. Das Telephotometer stand ca. 4 km südlich von Lindenberg, auf dem Messfeld bei Falkenberg. 75
- 5.1 Das idealisierte Modellpartikel besteht aus einem wasserunlöslichen, kugelförmigen Kern, der konzentrisch umgeben ist von einer wässrigen Lösung des wasserlöslichen Anteils des vormals trockenen Partikels. 79
- 5.2 Aktivierungsparameter atmosphärischer Partikel berechnet (a) aus der chemischen Zusammensetzung der Partikel und (b) aus dem Wachstumsfaktor der Partikel bei 90% rel. Feuchte (HTDMA) . . . 83
- 5.3 Vergleich der Zeitreihen der auf den Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel im trockenen Zustand feuchtekorrigierten Extinktionskoeffizienten des Telephotometers mit den direkt gemessenen Extinktionskoeffizienten trockener Partikel des Aerosolphotometers während LACE 98. 89
- 5.4 Abgebildet sind Halbstundenmittelwerte des feuchtekorrigierten Extinktionskoeffizienten des Telephotometers und die entsprechenden Werte des Extinktionskoeffizienten, berechnet aus der Summe des Streu- und Absorptionskoeffizienten, gemessen mit dem Nephelometer bzw. PSAP. Die Abszisse ist keine echte Zeitskala, da nur von beiden Verfahren parallel vorliegende Einzelmessungen unmittelbar hintereinander entlang der Abszisse aufgetragen wurden. Statt der sonst üblichen Ordnungszahlen der Einzelmessungen wurden zur besseren Orientierung hier Zeitmarken (Julianischer Tag 1998) auf der Abszisse verwendet. 91

- 5.5 Abgebildet sind die Zeitreihen des Extinktionskoeffizienten bestimmt mit Hilfe des Aerosolphotometers und berechnet mit Hilfe des Kugelschalenmodells. Aus den Modellwerten wurden Mittelwerte für die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer berechnet, um einen direkten Vergleich mit den mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Werten zu ermöglichen. 97
- 5.6 Abgebildet sind die Zeitreihen des Streukoeffizienten bestimmt mit Hilfe des Aerosolphotometers und berechnet mit Hilfe des Kugelschalenmodells. Aus den Modellwerten wurden Mittelwerte für die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer berechnet, um einen direkten Vergleich mit den mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Werten zu ermöglichen. 98
- 5.7 Abgebildet sind die Zeitreihen des Absorptionskoeffizienten bestimmt mit Hilfe des Aerosolphotometers und berechnet mit Hilfe des Kugelschalenmodells. Aus den Modellwerten wurden Mittelwerte für die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer berechnet, um einen direkten Vergleich mit den mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Werten zu ermöglichen. 98
- 5.8 Abgebildet sind die Zeitreihen der Single Scattering Albedo bestimmt mit Hilfe des Aerosolphotometers und berechnet mit Hilfe des Kugelschalenmodells. Aus den Modellwerten wurden Mittelwerte für die Belegzeiten der Filter für das Aerosolphotometer berechnet, um einen direkten Vergleich mit den mit Hilfe des Aerosolphotometers bestimmten Werten zu ermöglichen. 99
- 5.9 Streudiagramm: Aufgetragen ist der Streukoeffizient atmosphärischer Partikel, berechnet aus den mikrophysikalischen Messungen der Partikel gegenüber den direkten Messungen des Nephelometers auf Halbstundenwertbasis. Es zeigt sich eine gute Korrelation der beiden Zeitreihen mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2=0,86$. Die Steigung der Regressionsgeraden beträgt 1,53. Das starke Abweichen der Steigung von der 1:1-Korrelation weist auf Modellfehler bzw. falsche Annahmen im Modell hin. 100
- 5.10 Vergleich des berechneten Rückstreukoeffizienten atmosphärischer Partikel (Kugelschalenmodell) mit Nephelometermessungen 102
- 6.1 Typischer Tagesgang des Strahlungsangebotes, der direkten Sonnenstrahlung und der Erwärmungsrate während LACE 98 für (a) einen nahezu idealen Strahlungstag (10.08.1998 Jul. Tag 221) und (b) einen Tag mit durchbrochener Bewölkung (24.07.1998 Jul. Tag=204). 112

- 6.2 Tägliche Erwärmung der Luft ΔT_p (primäre Ordinate) und absorbierte Energie in Volumen von $1m^3$ Luft (sekundäre Ordinate) durch Absorption solarer Strahlung in Partikeln während der Tageslichtperiode. 114
- 6.3 Gleichgewichtsradius eines Partikels nahe der Sättigungsfeuchte $f=1$ ($R_0=10nm, B_0=0,7, T=273K$). Die kritische Feuchte f_{rc} wird aus der Bedingungsgleichung für das Maximum der eingezeichneten Kurve in der Form $\left(\frac{d \ln f}{dr}\right)_{f=f_{rc}} = 0$ berechnet. Für den kritischen Radius gilt dann: $r_c = r(f_{rc})$ 120
- 6.4 Quantile der maximalen Übersättigung der Wolkenluft als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit w auf Basis des kompletten LACE 98 -Datensatzes. Hervorgehoben sind die Minimum-, Median- und Maximum-Werte. Der Gesamtfehler setzt sich zusammen aus den partiellen Fehlern, die aus Unsicherheiten bei folgenden Messwerten oder daraus abgeleiteten Größen resultieren: Krümmungsparameter A_0 , Aktivierungsparameter B_0 , Größenverteilungsmessung $dn/d \log(r)$ und der Radiuskorrektur (zusammengefasster Fehler aus Unsicherheiten des aerodynamischen Formfaktors κ_0 und der Dichte der trockenen Partikel ρ_0) resultierender Fehler. Hellgrau überlagert dargestellt sind die Ergebnisse von Hänel [1987b] für folgende Aerosoltypen: (A) maritim, (B) maritim + Saharastaub, (C) Industrie, (D) Hintergrundaerosol (vgl. auch Tabelle 6.3). 125
- 6.5 Quantile der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen als Funktion der Vertikalwindgeschwindigkeit w [cm^{-1}] auf Basis des kompletten LACE 98 -Datensatzes. Hervorgehoben sind die Minimum-, Median- und Maximum-Werte. Der Gesamtfehler setzt sich zusammen aus den partiellen Fehlern, die aus Unsicherheiten bei folgenden Messwerten oder daraus abgeleiteten Größen resultieren: Krümmungsparameter A_0 , Aktivierungsparameter B_0 , Größenverteilungsmessung $dn/d \log(r)$ und der Radiuskorrektur (zusammengefasster Fehler aus Unsicherheiten des aerodynamischen Formfaktors κ_0 und der Dichte der Trockenen Partikel rh_{O_0}) resultierender Fehler. Hellgrau überlagert dargestellt sind die Ergebnisse von Hänel [1987b] für die Aerosoltypen: (A) maritim, (B) maritim + Saharastaub, (C) Industrie, (D) Hintergrundaerosol (vgl. auch Tabelle 6.3). 126
- 6.6 Quantile des Gesamtfehlers des Modells zur Berechnung der maximalen Übersättigung in der Wolkenluft und der Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen. 127

- 6.7 Zeitreihen (a) der massegewichteten mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit und (b) des Flusses trockener Partikelmasse während LACE 98 für Partikel bei aktueller Feuchte und Partikel im trockenen Zustand 138
- 6.8 Modellergebnisse des Feuchtekorrekturfaktors der Sedimentationsgeschwindigkeit atmosphärischer Partikel ξ_{sed} als Funktion der relativen Luftfeuchtigkeit f während LACE 98. Zur besseren Darstellung wurde $\xi_{\text{sed}}-1$ über $1-f$ in doppellogarithmischer Skalierung aufgetragen. Zusätzlich eingetragen sind die Näherungsfunktionen der Regressionsanalyse für rel. Feuchten größer bzw. kleiner 73,6% (dem Schnittpunkt beider Näherungsfunktionen.) . . 141
- 6.9 Näherungsfunktion II: Feuchtekorrekturfaktor der Sedimentationsgeschwindigkeit atmosphärischer Partikel als Funktion der rel. Luftfeuchte 143
- 6.10 Näherungsfunktion: Feuchtekorrekturfaktor der Extinktion atmosphärischer Partikel als Funktion der rel. Luftfeuchte. Die beiden eingezeichneten Näherungsfunktionen für $B_0 = 0,25$ und $B_0 = 0,6$ begrenzen die Punktwolke der Modellergebnisse 146
- 7.1 Anatomie des Atemtraktes und Einteilung in anatomische Regionen. Zur Erklärung der Abkürzungen ET₁, ET₂, BB, bb und Al siehe Text. Abbildung modifiziert nach *ICRP* [1994] 151
- 7.2 Schematische Darstellung der Transportwege und Clearanceraten zwischen den einzelnen Compartments. Das gezeigte Schema gilt sowohl für „Partikel im Grundzustand“ als auch für „Partikel im transformierten Zustand“ (vgl. Abbildung 7.3 auf Seite 155). Die anatomischen Regionen Al, bb, BB, Gi und LN werden in bis zu drei Compartments (s. Text) unterteilt, die sich sowohl in Clearancewegen als auch in Clearanceraten unterscheiden. (In der hier verwendeten Nomenklatur folgt im Anschluss an die anatomische Regionskennung (z.B. Al) eine Ordnungszahl oder der Zusatz „seq“ (engl. „sequestered in tissue“ (abgesondert ins Gewebe)), „TH“ oder „ET“ für **T**horakal oder **E**xtrathorakal also innerhalb oder außerhalb des Thorax gelegen. Erläuterungen zu den Abkürzungen der anatomischen Regionen sind im Text (7.1.1 auf Seite 150 zu finden. Abbildung modifiziert nach *ICRP* [1994]. . . 154

- 7.3 Schematische Darstellung des Compartmentmodells und der Clearancewege: Die Formelgrößen an den Pfeilen der Form s_{xx} bezeichnen Transportraten (Definition gleich der Definition der Clearanceraten, s. Gleichung 7.1). f_b bezeichnet den Anteil der Partikel, der im Respirationsepithel „gebunden“ wird. Nach dem hier verwendeten Modell gilt allerdings $f_b = 0$). Abbildung modifiziert nach *ICRP* [1994]. 155
- 7.4 Zeitlicher Verlauf der Partikelbelastung im Nasenrachenraum (ET) während LACE 98 ; Stoffklasse: M; Proband: Frau; Tätigkeit: leichte Arbeit. Zusätzlich zum Mittelwert eingezeichnet sind die zugehörige untere und obere Fehlerschranke. 158
- 7.5 Zeitlicher Verlauf der Partikelbelastung im Blut während LACE 98; Stoffklasse: M; Proband: Frau; Tätigkeit: leichte Arbeit. Als Endpunkt des Clearanceweges besitzt der Blutbereich keine Senke. Die Grafik zeigt also die akkumulierte Partikelmasse an, die ins Blut absorbiert wird. Ein Vorteil dieser Darstellung ist, dass die Steigung der Kurve direkt der Tagesdosis der absorbierten trockenen Partikelmasse entspricht. 158
- 7.6 Zeitlicher Verlauf der eingelagerten Partikelmasse in den Regionen Al, bb und BB: Stoffklasse M unter der Annahme einer konstanten Akkumulationsrate A_r . (vgl. auch Tabelle 7.3) 162
- 7.7 Kumulative Massenanteile der in den anatomischen Regionen Al bis Gi eingelagerten bzw. an die Umgebung ENV abgegebenen Partikelmasse als Funktion des Partikelradius. Diskussion der Ergebnisse s. Text 164
- 8.1 Vergleich der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen des Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel im trockenen Zustand für verschiedene Messkampagnen. 171
- 8.2 Einteilung der typischen Zugwege von Luftpaketen anhand von berechneten 72-Stunden-Rückwärtstrajektorien des Deutschen Wetterdienstes in sogenannte Trajektorientypen. Die vorgestellte Einteilung bewährte sich schon bei *Bundke* [1997] und wurde für LACE 98 übernommen. . . 172
- 8.3 Mittelwerte bzgl. verschiedener Trajektorientypen des Streu- und Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel während LACE 98 und KLF 96 (Winter/Frühjahr 1996) [*Bundke*, 1997]. Die Gesamtsäulenhöhe entspricht dem Extinktionskoeffizienten als Summe von Absorptions- und Streukoeffizient. Die hier eingetragenen Werte wurden auf Standardtemperatur (20°C) und -druck (1013,25 hPa) normiert. 173

8.4	Mittelwerte nach Trajektorientypen des Streu- und Absorptionskoeffizienten atmosphärischer Partikel für die Feldmesskampagnen (MACE 99 a&b:München Mai/Juni 1999) Als Summe von Absorptions- und Streukoeffizienten entspricht die Gesamtsäulenhöhe dem Extinktionskoeffizienten. (Werte wurden auf Standardtemperatur (20°C) und Druck (1013,25 hPa)normiert.)	174
8.5	Vergleich der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen des Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel für verschiedene Trajektorientypen während LACE 98.	175
8.6	Autokorrelationsfunktionen des Extinktionskoeffizienten atmosphärischer Partikel im trockenen (dicke Linie) und feuchten Zustand (dünne Linie). Die Persistenzzeit der Zeitreihe des Extinktionskoeffizienten der Partikel im trockenen Zustand beträgt ca. 1,6 Tage und im feuchten Zustand deutlich kürzer als ein Tag.	176
8.7	Lomb-Periodogramm für den Extinktionskoeffizienten feuchter atmosphärischer Partikel während LACE 98. Besonders deutlich zeichnet sich der tagesperiodische Einfluss der rel. Feuchte ab. Weitere hochsignifikante, zyklische Anteile sind insbesondere bei den Periodenlängen von 3,5 und 5,6 Tagen zu finden.	179
8.8	Eintrittshäufigkeit in [%] einer Rossbyperiodenlänge von (abgerundet) n Tagen während LACE 98.	181
8.9	Direkter Zeitreihenvergleich des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel (gemessen mit dem Aerosolphotometer) und der Zeitreihe des Logarithmus der Rossbyperiode während LACE 98.	182
8.10	Direkter Zeitreihenvergleich des Streukoeffizienten atmosphärischer Partikel (gemessen mit dem Aerosolphotometer) und berechnet aus der Rossbyperiode nach Gleichung 8.4 während LACE 98. Letztere wurde um den beobachteten positiven Offset des Mittelwertes ($1,85 \times 10^{-5} [m^{-1}]$) gegenüber den Messungen mit dem Aerosolphotometer korrigiert.	185
A.1	: Parametrisierung des Anisotropiefaktors als Funktion von zwei direkten Messgrößen	199

Tabellenverzeichnis

1.1	Änderungen der Erdbodentemperatur für verschiedene Strahlungsantriebsmechanismen und Szenarien. Außerdem angegeben ist der Strahlungsantrieb der Tropopause (ΔF_R) und der Klimasensitivitätsparameter (λ_{cs}). Tabelle nach <i>Seinfeld & Pandis</i> [1998]	11
1.2	Werte des global und jährlich gemittelten Strahlungsantriebs durch verschiedene klimawirksame Parameter. Die Werte bezeichnen die Veränderungen im Jahre 2000 gegenüber dem Referenzjahr 1750. In der letzten Spalte wird das Verhältnis des Strahlungsantriebs zwischen der Nordhemisphäre (NH) und der Südhemisphäre (SH) angegeben. BC=Schwarzer Kohlenstoff (black carbon); OC=organischer Kohlenstoff (organic carbon) Details und Berechnungsgrundlage s. <i>IPCC</i> [2001] Abschnitt 6.13.	18
1.3	Häufige Allergene als Auslöser einer exogenen, also außerhalb des Körpers entstanden allergischen Alveolitis	24
2.1	Phasenfunktion der Volumenstreuung für unterschiedliche Größenparameter α_P	33
4.1	Mittelwerte des Absorptionskoeffizienten (σ_a), des Streukoeffizienten (σ_s) sowie der Single Scattering Albedo (ω) von atmosphärischen Partikeln im trockenen Zustand gemessen mit dem Aerosolphotometer (IMGF), dem PSAP bzw. Nephelometer (IFT) und der IP-Methode (UniWien) während LACE 98.	66
4.2	Vergleich der Regressionskoeffizienten der empirischen Korrekturfunktion des PSAP dieser Arbeit mit den Regressionskoeffizienten nach <i>Bond et al.</i> [1999]	68

- 5.1 Medianwerte des Modellfehlers von $\xi_e = \frac{\sigma_e(f)}{\sigma_e(f=0)}$ auf Basis aller Modellrechnungen während LACE 98 in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f . In der ersten Spalte findet sich der prozentuale Gesamtfehler von ξ_e , der aus den in der untersten Tabellenzeile notierten Messfehlern der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der partiellen Fehler der einzelnen Einflussgrößen ist in den folgenden fünf Spalten angegeben. (B_0 Aktivierungsparameter, $n_0 - ik_0$ komplexer Brechungsindex der trockenen Partikel, f_{sm} Volumenanteil der wasserlöslichen Substanz und f relative Feuchtigkeit der Umgebungsluft. In der letzten Spalte ist noch zusätzlich der relative Einfluss der Korrektur des Radius der APS/DMPS Partikelgrößenklassen bei der Größenverteilungsmessung auf ξ_e angegeben. 88
- 5.2 Mittelwerte des wasserlöslichen Volumenanteils der Partikel f_{sm} , bestimmt mit Hilfe der SofA Methode während LACE 98. Die Messwerte liegen bezüglich verschiedener Impaktorstufen vor. Die 50% Abscheideeffizienzradien der einzelnen Impaktorstufen sind in der zweiten Spalte notiert. In der letzten Spalte sind die Varianzen $\sigma(f_{sm})$ von f_{sm} für die Messkampagne LACE 98 notiert. 89
- 5.3 Medianwerte des prozentualen Modellfehlers des Extinktionskoeffizienten der Partikel in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f . In der ersten Spalte steht der prozentuale Gesamtfehler, der aus den in der untersten Zeile notierten Messfehlern der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der Fehler der einzelnen Einflussgrößen (partielle Fehler) ist in den folgenden acht Spalten angegeben. Hierbei handelt es sich um folgende partiellen Fehler: ΔB_0 des Aktivierungsparameters, Δn_0 und Δk_0 des komplexen Brechungsindex der trockenen Partikel, Δf_{sm} des Volumenanteils der wasserlöslichen Substanz, Δf der rel. Feuchtigkeit, $\Delta \kappa_0$ des aerodynamischen Formfaktors, $\Delta \rho_0$ der Dichte und $\Delta \frac{dn_s}{d \log r_0}$ der Größenverteilung [Anzahlkonzentration] bei einem größenunabhängigen systematischen Fehler der Messung. In der letzten Spalte ist zusätzlich der relative Einfluss der Radiuskorrektur der APS/DMPS Größenverteilungsmessung angegeben, die aus der Differenz der Modellwerte mit und ohne Radiuskorrektur berechnet wurde. Dieser Wert geht nicht in den Gesamtfehler ein! 95

6.1	Variationsbreite der Erwärmungsrate \mathcal{E} und der täglichen Erwärmung der Luft während der Tageslichtperiode ΔT_p durch bodennahe Partikel verschiedener Autoren: Tabelle modifiziert nach Hänel & Kastner [2000] (ECH=Ärmelkanal, FFM=Frankfurt am Main (125 m.ü.N.N.), KLF=Kleiner Feldberg (Taunus, 826 m.ü.N.N), PIU=Piumazzo (Po-Ebene Italien), MTO= Monteombraro (720m.ü.N.N)(Apenninen nahe Piumazzo /Italien, TOC=Tokyo /Japan)	116
6.2	Fehleranalyse: Erwärmungsrate	118
6.3	Kenndaten (Anzahlkonzentration n_s und Aktivierungsparameter B_0 für verschiedene Aerosoltypen nach Hänel [1987b]	123
6.4	zu Gleichung 6.12	132
6.5	zu Gleichung 6.13	133
6.6	Sensitivitätsanalyse	135
6.7	Mittelwerte des Modellfehlers von (a) $\Delta \bar{u}$ und (b) $\Delta \mathcal{M}_\downarrow$ auf Basis aller Modellrechnungen während LACE 98 in Abhängigkeit von der rel. Feuchte f . In der ersten Spalte findet sich der prozentuale Gesamtfehler, der aus den in der untersten Tabellenzeile notierten Messfehlern bzw. Unsicherheiten der einzelnen Einflussgrößen resultiert. Eine Aufschlüsselung der partiellen Fehler der einzelnen Einflussgrößen ist in den folgenden fünf Spalten angegeben. (B_0 Aktivierungsparameter, T Temperatur, ρ_0 κ_0 Dichte und aerodynamischer Formfaktor der trockenen Partikel, f relative Feuchtigkeit der Umgebungsluft.)	135
6.8	Quantile und statistische Lageparameter für die massengewichtete, mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit atmosphärischer Partikel \bar{u} [$cm s^{-1}$] und für die Massenflussdichte der trockenen Partikelmasse \mathcal{M}_\downarrow [$gm^{-2}Tag^{-1}$]	139
7.1	Modellergebnisse der Tagesdosis und mittlere Belastung einzelner anatomischer Regionen des Atemtraktes während LACE 98 ; Stoffklasse F (schnelle Absorption ins Blut). Die angegebenen Mittelwerte der Tagesdosis wurden mit Hilfe einer linearen Regression bestimmt, deren Bestimmtheitsmaß R^2 in der vorletzten Zeile angegeben ist. In der letzten Zeile ist außerdem der mittlere Modellfehler, resultierend aus Fehlern bei der Feuchtemessung (1%), Größenverteilungsmessung(10%) und aus der Radiuskorrektur, angegeben. (Vgl. hierzu Kapitel 5).	159

- 7.2 Modellergebnisse der Tagesdosis und mittlere Belastung einzelner anatomischer Regionen des Atemtraktes während LACE 98 ; Stoffklasse M (moderate Absorption ins Blut) Die angegebenen Mittelwerte der Tagesdosis wurden mit Hilfe einer linearen Regression bestimmt, deren Bestimmtheitsmaß R^2 in der vorletzten Zeile angegeben ist. In der letzten Zeile ist außerdem der mittlere Modellfehler, resultierend aus Fehlern bei der Feuchtemessung (1%), Größenverteilungsmessung(10%) und aus der Radiuskorrektur, angegeben. (Vgl. hierzu Kapitel 5). 160
- 7.3 Partikelmasse R_∞ in den anatomischen Regionen Al, bb und BB im Gleichgewichtszustand zwischen Akkumulationsrate A_r und Lungenreinigung mit der Clearancerate λ_{cl} . Ferner ist die Retentionszeit $t_{90\%}$ verzeichnet, nach deren Verlauf $R_0(t)$ 90% des Gleichgewichtswertes erreicht. Proband: Frau, Stoffklasse: M, Tätigkeit: leichte Arbeit 162
- 7.4 Relativer Vergleich der Tagesdosis / Akkumulationsrate als Funktion (a) verschiedener Probanden und (b) verschiedener Tätigkeitsgruppen 165
- 8.1 Tabelle der Parameter a und b der Weibull-Verteilung für die Messkampagnen KLF 96 = Kleiner Feldberg 1996; FFM 96 = Frankfurt am Main 1996; LACE 98 (Lindenberg (Brandenburg)) und MACE 99 a & b München März/Juli 1999. Ferner verzeichnet ist der Testwert χ^2 des χ^2 -Anpassungstests und der Testentscheid, ob die Anpassung der Verteilungsfunktion an die Stichprobe vertretbar ist. Im untersten Teil der Tabelle sind folgende Kenngrößen verzeichnet, auf denen der Testentscheid basiert: a) das Signifikanzniveau S_i des Testes, b) die Zahl der Freiheitsgrade (χ^2 Test) sowie c) das zugehörige Alpha-Quantil der χ^2 Verteilung 170

8.2 Maxima des Lomb-Periodogramms als Funktion der Periodenlängen während LACE 98 für verschiedene im Rahmen dieser Arbeit erstellte Zeitreihen (Wolkenphysik: s_m maximale Übersättigung; n_{sg} Anzahl der wachsenden Wolkentropfen; optische Eigenschaften atmosphärischer Partikel: Extinktions-, Streu-, Absorptionskoeffizient und Single Scattering Albedo ($\sigma_e, \sigma_s, \sigma_a, \omega$) gemessen mit dem Aerosolphotometer (IMGF), dem Nephelometer (IFT) und berechnet aus den mikrophysikalischen Messungen mit dem Kugelschalenmodell (Index „M“); Aktivierungsparameter B_0 und rel. Feuchte f ; Massenmittel der Sedimentationsgeschwindigkeit \bar{u} ; \blackstar =Periode mit der höchsten Signifikanz $0,1 \gg Si$; \oplus = Periodenlänge mit der zweit- oder dritthöchsten Signifikanz $0,1 \gg Si$; $+$ = Signifikante Periode $0,1 > Si$; \bullet Periode vorhanden, aber $0,1 < Si$ (wird nur dann notiert, wenn ansonsten maximal eine signifikanten Periodenlänge vorhanden ist)). 178

C.1 Fehleranalyse: σ_{eM} 210

C.2 Fehleranalyse: σ_{sM} 211

C.3 Fehleranalyse: σ_{aM} 212

C.4 Fehleranalyse: σ_{bM} 213

Abkürzungsverzeichnis

ACE	Aerosol Characterisation Experiment
ADEOS	Advanced Earth Observing Satellite
AGCM	Atmospheric General Circulation Model
Al	Alveolar-Region
APS	AerosolParticle Sizer
aq	lat. Aqua, Wasser
AVHRR	Advanced Very High Resolution Radiometer
BB	Bronchial-Region
BB	Bronchial-Region
bb	Bronchiolar-Region
BC	Schwarzer Kohlenstoff (black carbon)
BL	Blut (im Sinne einer anatomische Region)
CFC	engl. Chloroflourocarbons = Fluorierte Chlor-Kohlen-Wasserstoffe (FCKW)
CPC	Condensation Partikel Counter
CRF	Cloud Radiative Forcing
DMA	Differential Mobility Analyser
DMPS	Differential Mobility Particle Sizer
DWD	Deutscher Wetterdienst
EC	Elementarer Kohlenstoff (Elemental Carbon)
ECH	Ärmelkanal
ENV	Umgebung (im Sinne einer Region)
ET	Extrathorakal-Region
F	Stoffklasse mit schneller Absorption ins Blut
FFM	Frankfurt am Main (125 m.ü.N.N.)
GAW	Global Atmospheric Watch
GCM	Global Circulation Model
Gi	Gastrointestinal-Trakt (im Sinne einer anatomische Region)
GSF	Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung

HSLIS	High Sensitive Liquid in situ Aerosol Spectrometer
HTDMA	Hygroscopic Tandem Differential Mobility Analyser
ICRF	Infrared Cloud Radiative Forcing
ICRP	International Commission on Radiological Protection
IFT	Institut für Troposphärenforschung, Leipzig
IMGF	Institut für Meteorologie und Geophysik, Universität Frankfurt
INDOEX	Indian Ocean Experiment
IP	Integrierende Platte (Integrating Plate)
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change (UN)
KLF	Kleiner Feldberg (Taunus, 826 m.ü.N.N)
LACE	Lindenberg Aerosol Charakterisierungs Experiment
LN	Lymphknoten (im Sinne einer anatomische Region)
LN(ET)	Lymphknoten der ET-Region
LN(TH)	Lymphknoten des Thorax
M	Stoffklasse mit moderater Absorption ins Blut
MACE	Münchener Aerosol Charakterisierungs experiment
MTO	Monteombraro (720m.ü.N.N)(Apenninen nahe Piumazzo /Italien
NH	Nordhemisphäre
NIMBUS	NASA Meteorological Satellites
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
OC	Organischer Kohlenstoff (Organic Carbon)
PIU	Piumazzo (Po-Ebene Italien)
PM _x	Fraktion der Partikel (Particulate Matter) die einen Durchmesser kleiner $x\mu\text{m}$ besitzen.
POLDER	Polarisation and Directionality of the Earth's Refectances
PSAP	Ruß (Particle Soot)-Absorptions Photometer
PSC	Polar Stratospheric Cloud
SCRF	Solar Cloud Radiative Forcing
SH	Südhemisphäre
Si	Signifikanzniveau
SoFA	Soluble Fraction of Aerosol Particles
SÜG	Strahlungsübertragungsgleichung
TARFOX	Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational Experiment
TDMPS	Twin Differential Mobility Analyser
TOA	Top of Atmosphere
TOC	Tokyo /Japan
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer

UCPC	Ultrafine Condensation Particle Conter
UDMA	Ultrafine Differential Mobility Analyser
UN	Vereinte Nationen (United Nations)
UniWien	Institut für Experimental Physik, Universität Wien
UTC	Universal Time Coordinated

Verzeichnis der Variablennamen und Konstanten

A	Abscheidfläche der Partikel auf dem Filter
a	Absorptionsfähigkeit
A^*	Hilfsgröße der Lorentz-Lorenz Mischungsregel
A_c	Partikelmasse im Compartment c
A_i	Regressionsparameter $i \in \mathbb{N}$
A_0	Krümmungsparameter bei unendlicher Verdünnung
A_{kf}	Krümmungsparameter
A_r	Akkumulationsrate von Partikeln in einer anatomischen Region
A_{Lidar}	effektive Empfängerfläche des Lidars
\mathcal{A}	Volumenabsorptionsrate
α_P	Größenparameter der Partikel
B_0	Aktivierungsparameter
B_f	Hygroskopizitätsparameter bei der rel. Feuchte f
\hat{b}	Rückstreuvermögen
β	nach oben gerichteter Rückstreuanteil an Partikel der Strahlung
$\beta_l(s)$	Lidar Volumenrückstreukoeffizient
β_R	Rosbyparameter
c_{pL}	spezifische Wärme der Luft bei konstantem Druck
C_W	Phasengeschwindigkeit der Rossbywellen
C_Z	normiertes Detektorsignal des Nephelometers
\hat{c}	Lichtgeschwindigkeit = $2,99792458 \times 10^8 \text{ m/s} - 1$
CRF	Cloud Radiative Forcing
$\Delta\omega_{pl}$	Änderung der planetaren Albedo
ΔT_P	Erwärmungsrate der Luft während der Tageslichtperiode infolge Absorption solarer Strahlung in bodennahen Aerosolpartikeln

$\Delta \overline{F}_R$	Strahlungsantrieb an der Tropopause, global gemittelt
$\Delta \overline{T}_S$	Änderung der mittleren globalen Oberflächentemperatur
$dN_{a\lambda}$	Schwächung der Strahldichte infolge Absorption
$dN_{cs\lambda}$	Verstärkung der Strahldichte infolge Streuung in den Strahl
$dN_{em\lambda}$	Verstärkung der Strahldichte infolge Emission
$dN_{sc\lambda}$	Schwächung der Strahldichte infolge Streuung aus dem Strahl
$d\omega_R$	Raumwinklelement
DRF	Direkter Strahlungsantrieb durch Aerosolpartikel am Oberrand der Atmosphäre (Direct Radiative Forcing)
ds	differenzielle Wegstrecke
e	Elementarladung
E_{Sonne}	Solarkonstante = 1379 Wm^{-2}
\mathcal{E}	Erwärmungsrate der Luft durch Absorption solarer Strahlung
\vec{E}	Elektrische Feldstärke
\vec{e}_z	Einheitsvektor in vertikaler Richtung
$\overline{\mathcal{E}}_{\text{max}}$	tägliches Maximum der Erwärmungsrate \mathcal{E}
$\overline{\mathcal{E}}_{\text{max}}$	maximale Erwärmungsrate der Luft infolge Absorption solarer Strahlung in bodennahen Aerosolpartikeln
ϵ	Emissivität
\hat{e}	Ladung eines Partikels pro Masseneinheit
$\eta_L 0$	dynamische Scherviskosität trockener Luft
f	relative Luftfeuchte
f_b	relativer Anteil der Partikel die in den Respirationsepithelien eingelagert werden
f_c	kritische Feuchte
f_{cc}	Wolkenbedeckungsgrad
F_{LW}	aufwärtsgerichtete langwellige Strahlung
f_m	maximale relative Feuchte der Wolkenluft
\vec{F}_n	Vektor der Nettostrahlungsflussdichte
f_o	Relative Feuchte über einer gekrümmten Oberfläche
f_{rc}	kritische relative Feuchte des Partikels
F_s	Strahlungsflussdichte der direkten Sonnenstrahlung
f_s	Volumenanteil des Rußes der Partikelprobe
F_{SW}	aufwärtsgerichtete kurzwellige Strahlung

f_{aniso}	Korrekturfaktor der anisotropen Komponente der diffusen Himmelsstrahlung aus dem durch den Schattenring abgeschatteten Himmelsraum.
f_{iso}	Korrekturfaktor der isotropen Komponente der diffusen Himmelsstrahlung aus dem durch den Schattenring abgeschatteten Himmelsraum.
F_{wb}	Weibull-Verteilungsfunktion
f_{wb}	Weibull-Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion
g	Erdbeschleunigung
g_{λ}	Asymmetrieparameter der Partikel bei der Wellenlänge λ
H_d	diffuse Himmelsstrahlung
H_d	diffuser Anteil der Globalstrahlung (Bestrahlungsstärke)
H_{dg}	diffuse Himmelsstrahlung gemessen mit dem Schattenring-Solarimeter
H_i	Bestrahlungsstärken der Sensoren des Bilanzphotometers ; $i = 1, \dots, 6$
i	Lichtelektrischer-Strom einer Photodiode (Telephotometer)
$ICRF$	Strahlungsantrieb durch Wolken im langwelligen Spektralbereich (Infrared Cloud Radiative Forcing)
K_1, K_2	Regressionskoeffizienten der empirischen Korrektur des PSAPs
K_n	Knudsenzahls des Partikels
κ_e	Wirkungsfaktor der Extinktion
κ_f	aerodynamischer Formfaktor bei der Feuchte f
L	Wellenlänge der Rossbywelle
l_c	charakteristische Länge
λ	Wellenlänge
λ_{0l}	mittlere freie Weglänge trockener Luft
λ_{cl}	Clearancerate [d^{-1}]
λ_{cs}	Klimasensitivitätsparameter
λ_l	mittlere freie Weglänge der Luft
M_a	Machzahl eines Partikels
$M_{f=0.6}$	Massenkonzentration der Partikel bei der rel. Feuchte $f=0,6$
M_{p0}	Massenkonzentration trockener Partikel
$\mathcal{M}_{\downarrow}^*$	effektive Massenflußdichte der trockenen Partikel
\hat{m}_{kw}	Massenmischungsverhältnis des kondensierten Wassers in einer Wolke

\mathcal{M}_\downarrow	Massenflussdichte der trockenen Partikelsubstanz durch Sedimentation
μ_s	Zenitparameter der Sonne
$n - ik$	Komplexer Brechungsindex der Partikel
$N_{0\lambda}$	spektrale Strahldichte, die von einem Objekt ausgeht (Telephotometer)
N_λ	spektrale Strahldichte
n_s	Anzahlkonzentration der Partikel
n_{sg}	Anzahlkonzentration der wachsenden Wolkentropfen
ω	Single Scattering Albedo der Partikel
Ω	Winkelgeschwindigkeit der Erdrotation
ω_A	Planetare-Albedo der Region
ω_{as}	Albedo eines Modell-Systems bestehend aus einer Aerosolschicht über der Erdoberfläche
ω_C	Albedo der Wolke
$\vec{\omega}_i$	Richtungsvektor der Einfallenden Strahlung
ω_{krit}	kritische Single Scattering Albedo der Partikel
ω_s	Erbodenalbedo
ω_{pl}	Planetare-Albedo $\approx 0,28$
$P(s)$	Detektorsignalstärke des Lidars
P_0	Ausgangsleistung des Lidar-Lasers
P_W	Periodenlänge der Rossbywelle
$\hat{p} = \hat{t} + \hat{f}$	Durchlaßvermögen (Transmissionsvermögen \hat{t} ; Vorwärtsstreuanteil \hat{f})
$\phi(\vec{\omega}_{iR}, \omega_R, \lambda)$	Phasenfunktion der Volumenstreuung der Partikel
ϕ_{HG}	Henyey-Greenstein-Phasenfunktion der Partikel
ϕ_R	Reyleigh-Phasenfunktion
ϕ_s	Azimutwinkel der Sonne
ψ	Winkel zwischen einfallender und gestreuter Strahlung
Q_{em}	Quellstrahldichte der Emission
Q_λ	spektrale Quellstrahldichte
$Q_{sc\lambda}$	Quellstrahldichte durch Streuung in den Strahl
R^*	Hilfsgröße der Lorentz-Lorenz Mischungsregel
r	Volumenäquivalentradius eines Partikels
$r^* = \frac{\hat{f}}{\hat{b}}$	Verhältnis von Vorwärts- zu Rückwärtsstreuanteil
R_0	Partikelmasse im Compartment
r_0	Volumenäquivalentradius eines Partikels im trockenen Zustand
r_c	kritischer Radius eines Partikels

r_{CD}	Radius der Wolkentropfen (Cloud Droplets)
r_{dc}	kritischer Trockenradius der Partikel
R_e	Reynoldszahl
r_g	mittlerer Radius der wachsenden Partikel
R_∞	Partikelmasse in einer anatomischen Region bzw. in einem Compartment im Gleichgewicht zwischen Akkumulation und Clearance
r_{Erde}	Erdradius
R_\uparrow	Anteil der nach oben reflektierten Strahlung
\hat{R}	Wachstumsfaktor der Partikel
\mathfrak{R}	Restglied
ρ_0	Dichte des Partikels im trockenen Zustand
ρ_{L0}	Dichte trockener Luft
ρ_{Pf}	Dichte des Partikels im feuchten Zustand
ρ_L	Dichte der Luft
ρ_{L0}	Dichte der trockenen Luft
ρ_W	Dichte des Wassers
S	Strahlungsangebot im Spektralbereich $\lambda = 0,3 \cdot 3,5 \mu\text{m}$
s	Wegstrecke
S_d	diffuse Komponente des Strahlungsangebotes
S_λ	spektrales Strahlungsangebot
s_m	maximale Übersättigung in Wolken
s_{pt}, s_p, s_t	Transformationsraten ; Clearancemodell
$SCRF$	Strahlungsantrieb durch Wolken im solaren Spektralbereich (Solar Cloud Radiative Forcing)
S_i	Signifikanzniveau eines Tests
$\sigma_a(\text{adj})$	Absorptionskoeffizient gemessen mit dem PSAP nach gerätespezifischer Korrektur
$\sigma_a(\text{PSAP})$	Absorptionskoeffizient gemessen mit dem PSAP ohne Korrektur
$\sigma_{a\lambda}$	Absorptionskoeffizient bei der Wellenlänge λ
σ_{bs}	Rückstreuoeffizient
$\sigma_{e\lambda}$	Extinktionskoeffizient bei der Wellenlänge λ
$\sigma_{s\lambda}$	Streukoeffizient bei der Wellenlänge λ
σ_{SB}	Stefan-Boltzmann-Konstante = $5,67 \cdot 10^{-8} \text{ Wm}^{-2}$
$\sigma_X(f)$	Schwächungskoeffizient bei der Feuchte f ; $x \in \{a, s, e\}$
$\sigma_{XM}(f)$	Schwächungskoeffizient berechnet aus mikrophysikalischen Messungen bei der Feuchte f ; $x \in \{a, s, e\}$

Sl	entfernungskorrigiertes, normiertes Detektorsignal des Lidars
T	absolute Temperatur
t	Zeitvariable
T_0	Transmissionsgrad eines unbelegten Filters
$t_{90\%}$	Retentionszeit, nach der $R_0(t)$ 90% von R_∞ erreicht wird
T_C	Temperatur der Wolke
T_\downarrow	nach unten transmittierte und gestreute Strahlung
T_R	Transmissionsgrad eines mit Partikeln belegten Filters
\hat{t}	Transmissionsvermögen
\overline{T}_S	Oberflächentemperatur
$\hat{\tau}$	Pulsdauer des Lidar-Lasers
τ	optische Dicke der Partikel
T_D	hydrodynamische Relaxationszeit eines Partikels
Tr_a	Transmission der oberhalb der Aerosolschicht liegenden Atmosphäre
Tr_C	Transmissivität der Wolke
θ_{Sonne}	Zenitwinkel der Sonne
u	Sedimentationsgeschwindigkeit eines Partikels
u_c	charakteristische Geschwindigkeit
\bar{u}	Sedimentationsgeschwindigkeit (massegewichteter Mittelwert der Partikelpopulation)
V_p	Partikelvolumen
v_u	Zonalkomponente der Wingschwindigkeit
\mathcal{V}	Probenvolumen
\hat{V}	Ventilationsrate der Atmung
\vec{v}_∞	Vektor der Endgeschwindigkeit eines Partikels
w	vertikale Windgeschwindigkeit
\mathcal{W}	Masse des innerhalb einer imaginären Säule durch die Wolke befindlichen kondensierten Wassers pro Einheitsfläche
$\xi_a(f)$	Feuchtekorrekturfaktor des Absorptionskoeffizienten der Partikel
$\xi_e(f)$	Feuchtekorrekturfaktor der Extinktionskoeffizienten der Partikel
ξ_{sed}	Feuchtekorrekturfaktor von \bar{u} und \mathcal{M}_\downarrow
$\xi_s(f)$	Feuchtekorrekturfaktor der Streukoeffizienten der Partikel

y_0	Anfangszustand der „Eigenschaft“ y zum Zeitpunkt $t=0$
y_∞	Gleichgewichtszustand der „Eigenschaft“ y
Z	Elektrostatische Mobilität

Literaturverzeichnis

- Anderson, T. L. ., D. S. Covert & et al. Performance Characteristics of a High-Sensitivity Three-Wavelength, Total Scatter/Backscatter Nephelometer. *J. Atm. Ocean. Tech.* 13, 13, 967–986, 1996.
- Anderson, T. L., D. S. Covert & et al. Aerosol Single Scattering Albedo: Values and Uncertainty at a Coastal Station in the Pacific Northwest. *J. Geophys. Res.*, 104, 26 793–26 808, 1999.
- Ansmann, A., U. Wandinger, A. Wiedensohler & U. Leiterer. Lindenberg Aerosol Characterization Experiment 1998 (LACE 98): Overview. *J. Geophys. Res.*, 107, 2002.
- Bates, T. S., B. J. Huebert, J. L. Gras, F. B. Griffins & P. A. Durkee. International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Project's first Aerosol Characterization Experiment (ACE1): Overview. *J. Geophys. Res.*, 103, 16 297–16 318, 1998.
- Berner, A. & C. Lürzer. Mass Size Distribution of Traffic Aerosols at Vienna. *J. Phys.Chem.*, 83, 2079–2083, 1980.
- Birmili, W., F. Stratmann & A. Wiedensohler. Design of a DMA-Based Size Spectrometer for a Large Particle Size Range and Stable Operation. *Journ. Aerosol. Sci.*, 30, 549–553, 1999.
- Blanchet, J. P. Application of the Chandrasekhar Mean to Aerosol Optical Parameters. *Atmos. Ocean*, 20, 189–206, 1982.
- Bohren, C. F. & D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley, New York, 1983.
- Bond, T. C., T. L. Anderson & D. Campbell. Calibration and Intercomparison of Filter-Based Measurements of Visible Light Absorption by Aerosols. *Aerosol Sci. Tech.*, 30, 582–600, 1999.

- Bundke, U. *Optische Eigenschaften atmosphärischer Teilchen: Teilchen im Stadtgebiet von Frankfurt am Main und Vergleich zwischen Frankfurt und dem Kleinen Feldberg/Taunus*. Diplomarbeit, Universität Frankfurt am Main, Institut für Meteorologie und Geophysik, Frankfurt am Main, 1997.
- Bundke, U., G. Hänel, H. Horvath, W. Kaller, S. Seidel, H. Wex, A. Wiedensohler, M. Wiegner & V. Freudenthaler. Aerosol optical properties during the Lindenberg Aerosol Characterization Experiment (LACE 98). *J. Geophys. Res.*, *107*, 10.1029/2000JD000 188, 2002.
- Busch, B., J. Heyder, K. Kandler, L. Schütz & C. Sprengard-Eichel. Hygroscopic Properties and Water Soluble Fraction of Atmospheric Particles in the Diameter Range from 50nm to 3,7 μm during LACE 98. *J. Geophys. Res.*, *107*, 10.1029/2000JD000 228, 2002.
- Busen, R. & G. Hänel. Radiation Budget of the Boundary Layer. Part I: Measurement of Absorption of Solar Radiation by Atmospheric Particles and Water Vapor. *Contrib. Atmos. Phys.*, *60*, 229–240, 1987a.
- Busen, R. & G. Hänel. Radiation Budget of the Boundary Layer. Part III: The Mean Solar Volume Absorption Coefficient of Water Vapor for Direct and Diffuse Radiation. *Contrib. Atmos. Phys.*, *60*, 248–254, 1987b.
- Carlson, N., T. & G. Benjamin, S. Radiative Heating Rates for Saharan Dust. *J. Atm. Sci.*, *37*, 193–213, 1980.
- Chandrasekhar, S. *Radiative Transfer*. Dover Publications, New York, 1960.
- Collis, R. T. H. & P. B. Russell. *Lidar Measurements of Particles and Gases by Elastic Backscattering and Differential Absorption*, Bd. Laser Monitoring of the Atmosphere. Springer, 1976. E.D. Hinkley Editor.
- Deuzé, J. L., F. M. Bréon, C. Devaux, P. Goloub, M. Herman, B. Lafrance, F. Maignan, A. Marchand, N. Nadal, G. Perry & D. Tanré. Remote Sensing of Aerosols over Land Surfaces from POLDER-ADEOS-1 Polarized Measurements. *J. Geophys. Res.*, *106*, 4913–4926, 2001.
- Dockery, D. W., C. A. Pope, X. Xu, J. D. Spengler, J. H. Ware, M. E. Fay, B. G. J. Ferris & F. E. Speizer. An Association between Air Pollution and Mortality in Six U.S. Cities. *N.Engl. J. Med.*, *329*, 1753–1759, 1993.
- Duce, R. A. The Atmospheric Input of Trace Species to the World Ocean. *Global Biogeochemical Cycles*, *5*, 193–259, 1991.

- Eichel, C. The Water-Soluble Fraction of Atmospheric Aerosol Particles and its Influence on Cloud Microphysics. *J. Geophys. Res.*, 101, 29 499–29 510, 1996.
- Feichter, J., E. Kjellstrom, F. Dentener, J. Lelieveld & R. G.-J. Simulation of the Troposphere Sulfur Cycle in a Global Climate Model. *Atm. Environ.*, 30, 1693–1707, 1996.
- Feichter, J., U. Lohmann & I. Schult. The Atmospheric Sulfur Cycle in ECHAM-4 and its Impact on the Short-wave Radiation. *Climate Dynamics*, 13, 235–246, 1997.
- Fitzgerald, J. W. Effect of Aerosol Composition on Cloud Droplet Size Distribution: A Numerical Study. *J. Atmos. Sci.*, 31, 1358–1367, 1974.
- Fitzgerald, J. W. & W. A. Hoppel. *Hygroscopic Aerosols*, Kap. Equilibrium Size of Atmospheric Aerosol Particles as a Function of Relative Humidity: Calculations Based on Measured Aerosol Properties. A. Deepak Publishing, 1984. L. H. Ruhnke Editor.
- Ghan, S. J. *Encyclopedia of Climate and Weather*, Bd. 1, Kap. Cloud Climate Interactions, S. 152–156. Oxford University Press, New York, Oxford, 1996. S. H. Schneider, Editor.
- Graedel, T. E. & P. J. Crutzen. *Chemie der Atmosphäre: Bedeutung für Klima und Umwelt*. Spektrum, Akad. Verl., Heidelberg; Berlin; Oxford, 1994.
- Grundmann, E. *Spezielle Pathologie*. Urban & Schwarzenberg, München, Wien, Baltimore, 1986.
- Hannessen, R. *Die Erwärmungsrate der Atmosphäre durch Absorption solarer Strahlung in Aerosolpartikeln*. Diplomarbeit, Universität Frankfurt, Institut für Meteorologie und Geophysik, Frankfurt am Main, Germany, 1995.
- Hartung, J., B. Elpelt & K.-H. Klösener. *Statistik*. R. Oldenbourg Verlag, München, Wien, 1995.
- Herman, M., J. L. Deuzé, P. Goloub, F. M. Bréon & D. Tanré. Remote Sensing of Aerosols over Land Surfaces including Polarization Measurements and Application to POLDER Measurements. *J. Geophys. Res.*, 102, 17 039–17 049, 1997.
- Herrmann, P. *Optische Eigenschaften atmosphärischer Partikeln auf dem Kleinen Feldberg(Taunus)*. Diplomarbeit, Universität Frankfurt, Institut für Meteorologie und Geophysik, Frankfurt am Main, 1994.

- Herrmann, P. Longtime Monitoring of the Optical Properties and the Soot Content of Atmospheric Boundary Layer Particles in Central Europe. *Journ. Aerosol. Sci.*, 29, 1211–1212, 1998.
- Hildebrand, H. *Pschyrembel Klinisches Wörterbuch*. de Gruyter, 1998.
- Hänel, G. The Properties of Atmospheric Aerosol Particles as Function of the Relative Humidity at Thermodynamic Equilibrium with the Surrounding Moist Air. *Advances in Geophysics*, 19, 73–188, 1976.
- Hänel, G. Humidity Effects on Gravitational Settling and Brownian Diffusion of Atmospheric Particles. *Pageoph*, 115, 775–797, 1977. Sedimentation, Brownsche Diffusion.
- Hänel, G. *Hygroscopic Aerosols*, Kap. The Physical Chemistry of atmospheric Particles. A. Deepak Publishing, 1984. Editor: L. H. Ruhnke.
- Hänel, G. Radiation Budget of the Boundary Layer. Part II: Simultaneous Measurements of Mean Solar Volume Absorption and Extinction Coefficients of Particles. *Contrib. Atmos. Phys.*, 60, 241–247, 1987a.
- Hänel, G. The Role of Aerosol Properties during the Condensational Stage of Cloud: A Reinvestigation of Numerics and Microphysics. *Beitr. Phys. Atmosph.*, 60, 321–339, 1987b.
- Hänel, G. Single Scattering Albedo, Asymmetry Parameter, Apparent Refractive Index, and Apparent Soot Content of Dry Atmospheric Particles. *Appl. Optics*, 27, 2287–2294, 1988.
- Hänel, G. Mikrophysik I: Physik und physikalische Chemie atmosphärischer Teilchen. Universität Frankfurt, Institut für Meteorologie und Geophysik, 1994a.
- Hänel, G. Optical Properties of Atmospheric Particles: Complete Sets obtained through Polar Photometry and an Improved Inversion Technique. *Appl. Optics*, 33, 7187–7199, 1994b.
- Hänel, G. & K. Kastner. Improved Atmospheric Solar Radiation Budget Pyranometry. *J. of Atmos. Ocean. Tec.*, 17, 893–904, 2000.
- Hänel, G. & M. Lehmann. Equilibrium Size of Aerosol Particles and Relative Humidity: New Experimental Data from Various Aerosol Types and their Treatment for Cloud Physics Application. *Contributions to Atmospheric Physics*, 54, 57–71, 1981.

- Hänel, G. & J. Thudium. Mean Bulk Densities of Samples of Dry Atmospheric Aerosol Particles: A Summary of Measured Data. *Pageoph*, 115, 799–803, 1977. Dichtemessung.
- Hänel, G., D. Weidert & R. Busen. Absorption of Solar Radiation in an Urban Atmosphere. *Atm. Environ.*, 24B, 283–292, 1990.
- Holton, J. R. *An Introduction to Dynamic Meteorology*. Academic Press, London, 1992.
- Horvath, H. *Journ. Aerosol. Sci.*, 27, Editorial, 1996.
- Horvath, H. Experimental Calibration for Aerosol Light Absorption Measurements using the Integrating Plate Method - Summary of the Data. *Journ. Aerosol. Sci.*, 28, 1149–1161, 1997.
- Hsu, N. C., J. R. Herman, O. Torres, B. N. Holben, D. Tanre, T. F. Eck, A. Smirnov, B. Chatenet & F. Lavenu. Comparison of the TOMS Aerosol Index with Sun-photometer Aerosol Optical Thickness: Result and Applications. *J. Geophys. Res.*, 104, 6269–6279, 1999.
- ICRP. *Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection*, Bd. ICRP Publication 66 von *Annals of the ICRP*, 24, 1-3. Elsevier Science, Oxford, 1994.
- IPCC. *Climate Change, 1990: The Intergovernmental Panel on Climate Change Scientific Assessment: The Science of Climate Change*. Cambridge Univ. Press, New York, 1990. Editor: J. T. Houghton and B. A. Callander and S. K. Varney.
- IPCC. *Climate Change, 1992: The Supplementary Report to the Intergovernmental Panel on Climate Change Scientific Assessment*. Cambridge Univ. Press, New York, 1992. Editor: J. T. Houghton and B. A. Callander and S. K. Varney.
- IPCC. *Climate Change, 1994: Radiative Forcing of Climate Change an Evaluation of the IPCC IS92 Emission Scenarios*. Cambridge Univ. Press, New York, 1994. Editor: J. T. Houghton and L. G. Meira Filho et al.
- IPCC. *Intergovernmental Panel on Climate Change: Climate Change, 1995: The Science of Climate Change*. Cambridge Univ. Press, New York, 1996. Editor: J. T. Houghton and G. J. Jenkins and J. Ephraums.
- IPCC. *Climate Change 2001: The Scientific Basis*. Cambridge University Press, 2001. Editor: Houghton, J. T. and Y. Ding and D. J. Griggs and M. Noguer and P. J. van der Linden and D. Xiaosu.

- Jaenicke, R. The double-stage-impactor: A further Application of the Impactor Principle. *Staub: Reinhaltung der Luft*, 31, 1–10, 1971.
- Jennings, S. G., C. D. O'Dowd, T. C. O'Conner & J. M. McGovern. Physical Characteristics of the Ambient Aerosol at Mace Head. *Atm. Environ.*, 25a, 557–562, 1991.
- Johnson, R. W. Spring and Fall Measurements of European Very Low Altitude Volume Scattering Coefficients. *AFGL-TR-81-0237*, S. 18, 1981.
- Kandler, K. private communication, 2000.
- Kaufman, Y. J., D. Tanré, L. A. Remer, E. F. Vermote, A. Chu & B. N. Holben. Operational Remote Sensing of Tropospheric Aerosol over Land from EOS-Moderate Resolution Image Spectroradiometer. *J. Geophys. Res.*, 102, 17 051–17 067, 1997.
- Kiehl, J. T., T. L. Schneider, R. P. J. & M. C. Barth. Radiative Forcing due to Sulfate Aerosols from Simulations with the National Center for Atmospheric Research Community Climate Model, Version 3. *J. Geophys. Res.*, 105, 1441–1457, 2000.
- Klett, J. D. Stable Analytical Solution for Processing Lidar Returns. *Appl. Optics*, 20, 211–220, 1981.
- Komguem, L. *Optical Properties and Climate Effects of Atmospheric Aerosols: Derivation from measured Data*. Dissertation, Universität Frankfurt, institut für Meteorologie und Geophysik, Frankfurt am Main, Deutschland, 1999.
- Liljequist, G. H. & K. Cihak. *Allgemeine Meteorologie*. Vieweg, Braunschweig, Deutschland, 3 Aufl., 1984.
- Lin, C. I., M. B. Baker & R. J. Charlson. Absorption Coefficient of the Atmospheric Aerosol: a Method for Measurement. *Appl. Optics*, 12, 1363–1365, 1973.
- Martin, J. H. Testing the Iron-hypothesis in Ecosystems of the Equatorial Pacific Ocean. *Nature*, 371, 1994.
- Mie, G. Beitrag zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Ann. Phys.*, 25, 377–445, 1908.
- Murai, K., M. Kobayashi, R. Goto & T. Yamuachi. The Absorption of Solar Radiation in the Lower Atmosphere. *Papers in Meteorol. and Geophys.*, 27, 21–32, 1976.

- Murphy, S. A., K. A. Bérubé, F. D. Pooley & R. J. Richards. The Response of Lung Epithelium to Well Characterized Fine Particles. *Life Sciences*, 62, 1789–1799, 1998.
- Netter, F. H. *Farbatlanten der Medizin = The Ciba collection of medical illustrations/ Konzept u. Ill.*, Bd. Bd.4 Atmungsorgane. Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York, 1982.
- Neusüß, C., D. Weise, W. Birmili, H. Wex, A. Wiedensohler & D. Covert. Size-Segregated Chemical, Gravimetric and Number Distribution derived Mass Closure of the Aerosol in Sagres, Portugal during ACE-2. *Tellus*, 52B, 169–184, 2000.
- Neusüß, C., A. Wiedensohler, H. Wex, C. Koziar, B. Busch, E. Brüggemann, T. Gnauk & M. Ebert. Parameterization of Aerosol Number, Mass and Chemical Size Distributions in Central Europe. *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JD000514, 2002.
- Pope, C. A., M. J. Thun, M. M. Namboodiri, D. W. Dockery, J. S. Evans, F. E. Speizer & C. W. Heath. Particulate Air Pollution as a Predictor of Mortality in a Prospective Study of U.S. Adults. *Am. J. Respi. Crit. Care Med*, 151, 669–674, 1995.
- Press, W. H., S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling & B. P. Flannery. *Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, New York, 2 Aufl., 1992.
- Radke, L. F., J. A. Coakley & M. D. King. Direct and Remote Sensing Observations of the Effects of Ships on Clouds. *Science*, 246, 1146–1148, 1989.
- Raes, F., T. Bates, F. McGovern & M. van Liederkerke. The 2nd Aerosol Characterization Experiment (ACE-2): General Overview and Main Results. *Tellus*, 52B, 111–125, 2000.
- Renz-Polster, H. & J. Braun. *Basislehrbuch Innere Medizin*. Urban und Fischer, München, Jena, 1999.
- Rinne, H. *Taschenbuch der Statistik*. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt am Main, Deutschland, 1995.
- Roach, W. T. Some Aircraft Observations of Fluxes of Solar Radiation in the Atmosphere. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, 87, 346–363, 1961.

- Roelofs, G.-J., J. Lelieveld & L. Ganzeveld. Simulation of Global Sulfate Distribution and the Influence on Effective Cloud Drop Radii with a Coupled Photochemistry-sulfur Cycle Model. *Tellus*, 50B, 224–242, 1998.
- Russel, P. B., P. V. Hobbs & L. L. Stowe. An Overview of the Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational Experiment (TARFOX). *J. Geophys. Res.*, 104, 2213–2222, 1999.
- Salby, M. L. *Fundamentals of Atmospheric Physics*. Academic Press, San Diego, New York, Boston, London, Sydney, Tokyo, Toronto, 1996.
- Schettler, G. & H. Greten. *Innere Medizin: verstehen - lernen - anwenden*. Thieme, Stuttgart, New-York, 1998.
- Schulz, M. *Warnsignal Klima / Wissenschaftliche Fakten*, Kap. Rolle der natürlichen und anthropogenen troposphärischen Aerosole im Klimageschehen, S. 126–131. *Wissenschaftliche Auswertungen*, Hamburg, 1998. Editor: Hartmut Graßl und Peter Hupfer.
- Schwartz, J. & L. M. Naes. Fine Particle are more Strongly Associated than Coarse Particles with Acute Respiratory Health Effects in Schoolchildren. *Epidemiology*, 11, 6–10, 2000.
- Schwartz, S. E. The Whitehouse Effect - Short-Wave Radiative Forcing of Climate by Anthropogenic Aerosols: An Overview. *Journ. Aerosol. Sci.*, 27, 359–383, 1996.
- Seinfeld, J. H. & S. N. Pandis. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to climate Change*. Jhon Wiley and Sons, New York, 1998.
- Shettle, E. P. & R. W. Fenn. Models for the aerosols of the lower atmosphere and the effects of humidity variations on their optical properties. *Techn. Ber.*, 1979.
- Sloane, C. S. Optical Properties of Aerosols of Mixed Composition. *Atm. Environ.*, 18, 871–878, 1983.
- Snipes, M. B., A. C. James & A. M. Jarabek. The 1994 ICRP66 Human Respiratory Tract Dosimetry Model as a Tool for predicting Lung Burdens from Exposures To Environmental Aerosols. *Appl. Occup. Environ. Hyg.*, 12, 547–553, 1997. Deposition+ Clearance.
- Stowe, L. L., A. M. Ignatov & R. R. Singh. Development, Validation, and Potential Enhancements to the Second-generation Operational Aerosol Product at the

- National Environmental Satellite, Data and Information Service of the National Oceanic and Atmospheric Administration. *J. Geophys. Res.*, 102, 16 923–16 934, 1997.
- Thews, G., E. Mutschler & P. Vaupel. *Anatomie, Physiologie, Pathophysiologie des Menschen*. Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft, Stuttgart, 1999. Editor: Thews, Gerhard.
- Twomey, S. A. *Aerosol Effects on Climate*, Kap. Radiative Properties of Clouds, S. 275ff. University of Arizona Press, 1993. Editor: Jennings, S. G.
- van de Hulst, H. C. *Multiple Light Scattering*. Academic Press, New-York, 1980.
- Vitale, V., C. Tomasi, A. Lupi, A. Cacciari & S. Marani. Retrieval of Columnar Aerosol Size Distributions and Radiative-forcing Evaluations from Sunphotometric Measurements taken during the CLEARCOLUMN (ACE 2) Experiment. *Atm. Environ.*, 34, 5095–5105, 2000.
- Warbinek, M. *Eichung und Inbetriebnahme eines Messgeräts für die direkte und indirekte solare Strahlung*. Diplomarbeit, Universität Frankfurt, Institut für Meteorologie und Geophysik, Frankfurt am Main, Deutschland, 1993.
- Wetter, T. *Eine Untersuchung zur Charakterisierung der zeitlichen Variabilität der luftchemischen Bedingungen am Taunus-Observatorium: Messungen des CO - und H₂ -Mischungsverhältnisses im Winter 1996/97*. Diplomarbeit, Universität Frankfurt, Institut für Meteorologie und Geophysik, Frankfurt am Main, 1998.
- Wiegner, M., H. Quenzel, D. Rabus, W. Völker, P. Völger, J. Ackermann, C. Köhler, F. Fergg & G. Wildgruber. *Lidar and Atmospheric Sensing*, Bd. SPIE Vol. 2505, Kap. The mobile Three-Wavelength Backscatter Lidar of the Meteorological Institute of the University Munich, S. 2–10. SPIE, 1995.
- Young, K. C. *Microphysical Processes in Clouds*. Oxford University Press, New York, Oxford, 1993.

Lebenslauf

Name: Ulrich Robert Ludwig Bundke
Geburtsdatum: 12. Juli 1971
Geburtsort: Frankfurt am Main
Nationalität: deutsch
Familienstand: ledig

Mai 1990 **Dreieich-Gymnasium Langen**
Abitur

Oktober 1990 –
Januar 1991 **1. Panzeratuleriebattalion Homberg (Efze)**
Grundwehrdienst

1991 – 1997 **Johann Wolfdang Goethe Universität Frankfurt**
Studium der Meteorologie

Juli 1993 Vordiplom Meteorologie

September 1995 – **Institut für Meteorologie und Geophysik - Universität
Frankfurt**

Februar 1996 Arbeitsgruppe *Strahlungs- und Aerosolphysik*
Diplomarbeit: *Optische Eigenschaften atmosphärischer Teil-
chen: Teilchen im Stadtgebiet von Frankfurt am Main und Ver-
gleich zwischen Frankfurt und dem kleinen Feldberg (Taunus)*
Betreuer: Prof. Dr. G. Hänel

Oktober 1997 Abschluss: Diplom-Meteorologe
Nebenfächer: Dynamik der Atmosphäre, Astrophysik, Physi-
sche Geographie

Oktober 1997 – **Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt**
Institut für Meteorologie und Geophysik
Dissertation: *Über die Variabilität der physikalischen Eigen-
schaften atmosphärischer Aerosolpartikel*
Betreuer: Prof. Dr. G. Hänel

Juli 1998 Verleihung des Förderpreises der Johann Wolfgang Goethe
Universität Frankfurt am Main