

# Stabilität und Transport in der planetaren Grenzschicht – Untersuchungen mit Radiosonden- und Spurengasmessungen während PARADE

Dissertation zur Erlangung des Grades

"Doktor der Naturwissenschaft"

am Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik

der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

**Florian Robert Maria Berkes**  
geboren am 17.07.1984 in Mainz

Mainz, den 17. November 2014



# Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit untersucht die Struktur und Zusammensetzung der untersten Atmosphäre im Rahmen der PARADE-Messkampagne (PARTicles and RADicals: Diel observations of the impact of urban and biogenic Emissions) am Kleinen Feldberg in Deutschland im Spätsommer 2011. Dazu werden Messungen von meteorologischen Grundgrößen (Temperatur, Feuchte, Druck, Windgeschwindigkeit und -richtung) zusammen mit Radiosonden und flugzeuggetragenen Messungen von Spurengasen (Kohlenstoffmonoxid, -dioxid, Ozon und Partikelanzahlkonzentrationen) ausgewertet. Ziel ist es, mit diesen Daten, die thermodynamischen und dynamischen Eigenschaften und deren Einfluss auf die chemische Luftmassenzusammensetzung in der planetaren Grenzschicht zu bestimmen. Dazu werden die Radiosonden- und Flugzeugmessungen mit Lagrangeschen Methoden kombiniert und es wird zwischen rein kinematischen Modellen (LAGRANTO und FLEXTRA) sowie sogenannten Partikeldispersionsmodellen (FLEXPART) unterschieden. Zum ersten Mal wurde im Rahmen dieser Arbeit dabei auch eine Version von FLEXPART-COSMO verwendet, die von den meteorologischen Analysefeldern des Deutschen Wetterdienstes angetrieben werden.

Aus verschiedenen bekannten Methoden der Grenzschichthöhenbestimmung mit Radiosondenmessungen wird die Bulk-Richardson-Zahl-Methode als Referenzmethode verwendet, da sie eine etablierte Methode sowohl für Messungen und als auch Modellanalysen darstellt. Mit einer Toleranz von 125 m, kann zu 95 % mit mindestens drei anderen Methoden eine Übereinstimmung zu der ermittelten Grenzschichthöhe festgestellt werden, was die Qualität der Grenzschichthöhe bestätigt.

Die Grenzschichthöhe variiert während der Messkampagne zwischen 0 und 2000 m über Grund, wobei eine hohe Grenzschicht nach dem Durchzug von Kaltfronten beobachtet wird, hingegen eine niedrige Grenzschicht unter Hochdruckeinfluss und damit verbundener Subsidenz bei windarmen Bedingungen im Warmsektor. Ein Vergleich zwischen den Grenzschichthöhen aus Radiosonden und aus Modellen (COSMO-DE, COSMO-EU, COSMO-7) zeigt nur geringe Unterschiede um -6 bis +12 % während der Kampagne am Kleinen Feldberg.

Es kann allerdings gezeigt werden, dass in größeren Simulationsgebieten systematische Unterschiede zwischen den Modellen (COSMO-7 und COSMO-EU) auftreten. Im Rahmen dieser Arbeit wird deutlich, dass die Bodenfeuchte, die in diesen beiden Modellen unterschiedlich initialisiert wird, zu verschiedenen Grenzschichthöhen führt. Die Folge sind systematische Unterschiede in der Luftmassenherkunft und insbesondere der Emissionssensitivität.

Des Weiteren kann lokale Mischung zwischen der Grenzschicht und der freien Troposphäre bestimmt werden. Dies zeigt sich in der zeitlichen Änderung der Korrelationen zwischen  $\text{CO}_2$  und  $\text{O}_3$  aus den Flugzeugmessungen, und wird im Vergleich mit Rückwärtstrajektorien und Radiosondenprofilen bestärkt. Das Einmischen der Luftmassen in die Grenzschicht beeinflusst dabei die chemische Zusammensetzung in der Vertikalen und wahrscheinlich auch am Boden. Diese experimentelle Studie bestätigt die Relevanz der Einmischungsprozesse aus der freien Troposphäre und die Verwendbarkeit der Korrelationsmethode, um Austausch- und Einmischungsprozesse an dieser Grenzfläche zu bestimmen.



# Abstract

In this thesis the structure and air mass composition of the lower atmosphere during the field campaign PARADE (PARTicles and RADicals: Diel observations of the impact of urban and biogenic Emissions) on Mt. Kleiner Feldberg in Germany in late summer 2011 is studied. For this purpose measurements of meteorological variables (temperature, moisture, pressure, wind speed and direction) from radio soundings and a variety of chemical tracers (carbon monoxide, carbon dioxide, ozone and particle number concentration) from aircraft measurements are analysed. The main objective is to characterise the thermodynamical and dynamic factors based on this data, which determine the chemical composition of the boundary layer. Therefore, the radio soundings and aircraft measurements are combined with different Lagrangian methods. A distinction is made between purely kinematic trajectory models (LAGRANTO and FLEXTRA) and so-called particle dispersion models (FLEXPART). For this thesis, FLEXPART-COSMO was driven for the first time by meteorological analyses from the German weather service (DWD).

Among various methods the bulk Richardson number method was used to determine the boundary layer height, since it is an established method for both measurements and model analyses. With a tolerance of 125 m, this derived boundary layer height agrees with at least three other methods in 95 % and this confirms the quality of the derived boundary layer height. The boundary layer depth varies during the measurement campaign between 0 and 2000 m above ground level. While mature boundary layers are observed after the passage of cold fronts, shallow boundary layers under high pressure are related to subsidence at low wind conditions in the warm sector. A comparison between the radiosonde-derived boundary layer height and boundary layer height from models (COSMO-DE, COSMO-EU, COSMO-7) differs only by -6 to +12 % during the campaign at Kleiner Feldberg.

However, it can be shown that systematic differences between the models (COSMO-7 and COSMO-EU) occur in larger simulation areas. Furthermore, it can be shown that the soil moisture, which is initialised differently in these two models, leads to different boundary layer heights. The consequences are systematic differences of the air mass origin and in particular in the emission sensitivity.

Furthermore, local mixing between the boundary layer and the free troposphere is observed. This is demonstrated by the temporal change of the correlations between  $\text{CO}_2$  and  $\text{O}_3$  from the aircraft measurements, and is confirmed from comparison with backward trajectories and radiosonde profiles. Transport of this mixed air masses might influence the chemical composition in the vertical and at the bottom within the boundary layer. This experimental study points out the relevance of the entrainment processes in the lower troposphere and that the tracer-tracer-correlation method can be used to determine the boundary layer dynamics across the planetary boundary layer inversion.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>vii</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Motivation . . . . .	1
1.2 Die planetare Grenzschicht . . . . .	2
1.3 Die Bedeutung von Spurengasen in der Atmosphäre . . . . .	10
1.4 Die planetare Grenzschicht über komplexem Gelände . . . . .	11
1.5 Einfluss von Zyklonen auf den Ferntransport von Grenzschichtluftmassen . . . . .	11
1.6 Einmischen von Luftmassen aus der freien Troposphäre in die Grenzschicht . . . . .	14
1.7 Ziele dieser Arbeit . . . . .	15
<b>2 Beschreibung der Instrumente und Hilfsmittel</b>	<b>17</b>
2.1 Instrumente . . . . .	17
2.1.1 Taunus Observatorium . . . . .	17
2.1.2 CO <sub>2</sub> -Messungen . . . . .	17
2.1.3 Radiosonden . . . . .	19
2.1.4 Ceilometer . . . . .	20
2.1.5 Flugzeuggetragene Instrumente . . . . .	20
2.2 Numerische Wettervorhersagemodelle . . . . .	23
2.2.1 Deutscher Wetterdienst: COSMO-DE und COMSO-EU . . . . .	23
2.2.2 MeteoSchweiz: COSMO-7 . . . . .	23
2.3 Lagrangesche Transportmodelle . . . . .	24
2.3.1 Kinematische Trajektorien . . . . .	24
2.3.2 Lagrangesche Partikel-Dispersionsmodelle . . . . .	25
<b>3 Messkampagne PARADE</b>	<b>27</b>
3.1 Messkampagne PARADE . . . . .	27
3.2 Meteorologische Bedingungen während PARADE . . . . .	28
3.3 Durchführung von Messungen auf dem Kleinen Feldberg . . . . .	35
3.3.1 CO <sub>2</sub> -Messungen . . . . .	35
3.3.2 Messungen mit Radiosonden . . . . .	36
3.4 Grenzschichthöhenbestimmung mit Radiosonden . . . . .	36
<b>4 Zeitreihe und statistische Analyse der planetaren Grenzschichthöhe während der Messkam- pagne PARADE</b>	<b>41</b>
4.1 Datenaufbereitung . . . . .	41
4.2 Die planetare Grenzschichthöhe während der Messkampagne PARADE . . . . .	43
4.3 Beispiele zur Bestimmung der PGSH . . . . .	45
4.4 Unsicherheit und Qualität der PGSH-Bestimmung . . . . .	48
4.5 Einfluss lokaler Bedingungen auf die GSH . . . . .	53
4.6 Lokale Effekte auf die CO <sub>2</sub> -Mischungsverhältnisse am Boden . . . . .	60
4.7 Zusammenfassung und Diskussion . . . . .	64

<b>5</b>	<b>Evaluation der Grenzschichthöhe mit numerischen Wettervorhersagemodellen</b>	<b>65</b>
5.1	Datenaufbereitung . . . . .	65
5.2	Vergleich der Grenzschichthöhe . . . . .	66
5.3	Vergleich der meteorologischen Variablen . . . . .	69
5.4	Zusammenfassung und Diskussion . . . . .	72
<b>6</b>	<b>Transport von Grenzschichtluftmassen in die freie Troposphäre</b>	<b>73</b>
6.1	Flugzeugmessungen . . . . .	73
6.2	Mittlere Vertikalprofile . . . . .	81
6.3	Fallstudie: Hebung von Grenzschichtluftmassen in die freie Troposphäre am 02.09.2011 . .	82
6.3.1	Meteorologische und synoptische Situation . . . . .	85
6.3.2	Trajektorien . . . . .	87
6.3.3	Hebung entlang einer Warmfront . . . . .	88
6.3.4	Wie vertrauenswürdig sind die Trajektorien? . . . . .	90
6.3.5	FLEXPART-COSMO-7 und FLEXPART-COSMO-EU . . . . .	90
6.4	Zusammenfassung und abschließende Bewertung . . . . .	95
<b>7</b>	<b>Einmischung von der freien Troposphäre in die planetare Grenzschicht</b>	<b>97</b>
7.1	Einführung . . . . .	97
7.2	Beobachtungen und Datenbasis . . . . .	98
7.3	Experimenteller Nachweis von Mischung . . . . .	101
7.4	Identifizierung von Transportprozessen mit Spurengasprofilen . . . . .	104
7.4.1	Ursprung der Luftmassen mit Transportmodellen . . . . .	106
7.4.2	Einfluss des Mischungsprozesses auf die bodennahen Spurengase . . . . .	109
7.5	Zusammenfassung und Diskussion . . . . .	110
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>111</b>
8.1	Zusammenfassung . . . . .	111
8.2	Ausblick . . . . .	113
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>115</b>
	<b>Abkürzungs- und Symbolverzeichnis</b>	<b>127</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>131</b>
	<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>137</b>
	<b>Anhang</b>	<b>138</b>
	A Statistische Methoden . . . . .	139
	B FLEXPART-COSMO-EU . . . . .	141
	C Flugzeuggetragene Messinstrumente . . . . .	141
	D Grenzschichthöhenbestimmung mit dem Ceilometer . . . . .	143



# Kapitel 1

## Einleitung

### 1.1 Motivation

Von Menschen verursachte Luftverschmutzung ist seit Beginn der Industrialisierung von einem lokalen und regionalen zu einem weltweiten Problem für die Gesundheit der Menschen, der Tier- und Pflanzenwelt geworden (WHO, 2013). Durch die zunehmende Weltbevölkerung und den daraus resultierenden Energiebedarf verbunden mit den steigenden Emissionen von Spurengasen werden immer mehr chemische Stoffe aus der planetaren Grenzschicht in die Atmosphäre gebracht (Elsom, 1992). Folglich werden mehr Spurenstoffe aus der Grenzschicht in die freie Troposphäre exportiert und können aus einem lokalen Luftverschmutzungsproblem ein regionales oder gar interkontinentales Problem machen, da die Spurenstoffe in der freien Troposphäre wegen der kühleren Temperaturen meist eine längere Lebensdauer haben und dadurch weitere Wege zurücklegen können (u. a. Brock et al., 2004).

Prominente Beispiele für anthropogene Luftverschmutzung in der Grenzschicht sind das Ozon und primäre Aerosole (emittierte Schwebestoffe wie Feinstaub, Dieselruß usw). Ozon ist ein sekundärer Luftschadstoff und wird photochemisch aus natürlichen und anthropogenen primären Luftschadstoffen wie Stickoxiden ( $\text{NO}_x$ ) und flüchtigen organischen Verbindungen (VOC) unter Einwirkung von Sonnenlicht produziert (Seinfeld, 1989; Comrie, 1990). Hauptverursacher der anthropogenen Vorläufersubstanzen sind Industrie, Gewerbe und motorisierter Verkehr (Chapman, 2007). Verstärkt werden diese Effekte der Luftverschmutzung durch die meteorologische Situation. Während windschwacher Perioden an sonnigen Sommertagen kann durch Akkumulation von Verschmutzung die Photochemie effektiv zur Ozonproduktion (Sommersmog) beitragen (Cody et al., 1992; Fast and Zhong, 1998). Des Weiteren können Inversionswetterlagen speziell im Winter zu einer Akkumulation der Luftmassen innerhalb dieser Schicht führen. Häufig wird in diesem Zusammenhang die Smog-Katastrophe in London 1952 genannt (Davis et al., 2002). Zuletzt sorgt dieses Phänomen zur Minderung der Luftqualität in China, wo im Winter 2014 die höchsten je gemessenen Konzentrationen beobachtet wurden (ZeitOnline, 2014). Die hohen Ozon- und Aerosolkonzentrationen belasten die Gesundheit der Menschen und erhöhen nachweislich die Sterberate (u. a. Warwick and Doig, 2004). Auch der weltweite Anstieg der Kohlenstoffdioxidkonzentration ( $\text{CO}_2$ ) in der Atmosphäre führt global zu einem erhöhten Treibhauseffekt und der damit verbundenen Erwärmung des Planeten mit weitreichenden, teils noch unbekanntem Konsequenzen (IPCC, 2007). Vilà-Guerau de Arellano et al. (2012) erkannten, dass mit höheren Temperaturen durch den  $\text{CO}_2$ -Anstieg Pflanzen weniger Wasser verdunsten lassen, sodass lokal weniger Wolken entstehen, und dieser bisher unbekannte Rückkopplungsmechanismus sorgt durch die ausbleibende kurzweilige Strahlungsreflexion für eine weitere Erwärmung am Boden.

Maßnahmen zur Reduzierung der Emissionen von anthropogenen Vorläufersubstanzen durch Grenzwerte hatten bereits einen positiven Effekt auf die lokale Boden- und Luftqualität (u. a. WHO, 2006). Die Maßnahmen beschränken sich aber nur auf die regionale Umwelt in städtischen Gebieten, wobei auch die Biomassenverbrennung aus unbewohnten Gebieten Auswirkungen auf die regionale und globale Luftqualität hat und beachtet werden muss (Akimoto, 2003). Um die globale Luftqualität und deren direkten Einfluss auf die Lebenserwartung mit Globalmodellen (u. a. Tost et al., 2007; Lelieveld et al., 2013)

vorherzusagen, bedarf es neben Messdaten auch guter meteorologischer Analysen und der Implementierung von chemischen Prozessen. Des Weiteren spielen der Transport von Luftmassen aus der Grenzschicht sowie der Einmischungsprozess an der Inversion der Grenzschicht eine wichtige Rolle (u. a. Gerbig et al., 2008).

Viele experimentelle und theoretische Studien unterstreichen die Bedeutung von Ferntransport zur Ausbreitung von Verschmutzung (u. a. Stohl and Thomson, 1999; Donnell et al., 2001; Dacre et al., 2007), wobei Studien zu Transport- und Einmischungsprozessen von Spurengasen zwischen der planetaren Grenzschicht und der freien Troposphäre selten sind (Neuman et al., 2012), besonders unter bewölkten Bedingungen (Kalthoff et al., 2013).

Die vorliegende Arbeit soll diese Transportprozesse in der unteren Troposphäre in komplexen Gelände untersuchen, um das Verständnis der bekannten physikalischen Prozesse in der Grenzschicht zu fördern und durch weitere Messungen und Analysemethoden zu bereichern.

## 1.2 Die planetare Grenzschicht

Die Schichtung der Erdatmosphäre lässt sich mit dem vertikalen Verlauf der Temperatur – sie fällt, steigt – definieren. Dabei befinden sich zwei Drittel der Atmosphärenmasse in der Troposphäre, die sich über den Polen bis zu 8 km und in den Tropen bis zu 16 km erstreckt und mit der Höhe abkühlt. Darüber befindet sich die Stratosphäre mit einem markanten Temperaturanstieg, welcher durch die Bildung von Ozon in der Stratosphäre erzeugt wird, und darüber die weiteren Sphären mit dem Übergang in die Exosphäre. Die untere Begrenzung der Troposphäre zur Erdoberfläche bildet die planetare Grenzschicht.

### Dynamik der Atmosphäre

Die atmosphärische Strömung wird angetrieben von Kräften, die einen Einfluss auf die Massenumverteilung in der Atmosphäre haben und die mit den vier Kenngrößen Temperatur ( $T$  [K]), Druck ( $p$  [hPa]), Dichte ( $\rho$  [ $\text{kg m}^{-3}$ ]) und Wind ( $\vec{u}$  [ $\text{m s}^{-1}$ ]) beschrieben werden können. Die Relationen zwischen diesen Kenngrößen zur Beschreibung der Atmosphäre werden in fünf meteorologischen Grundgleichungen (Zustandsgleichung und Gesetze zur Erhaltung der Masse, Wärme, Feuchte und Wind) gebracht und hier kurz zusammengefasst. Für eine detaillierte Herleitung wird auf die ausführliche Literatur verwiesen (u. a. Stull, 1988; Arya, 2001; Holton, 2004).

#### Ideale Gasgleichung

Die ideale Gasgleichung für trockene Luft liefert einen zeitunabhängigen Zusammenhang zwischen den Größen Druck, Dichte und Temperatur:

$$p = \rho \cdot R_d \cdot T \quad (1.1)$$

mit der spezifischen Gaskonstante für trockene Luft  $R_d$  [ $\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ ].

#### Kontinuitätsgleichung

Die Kontinuitätsgleichung beschreibt die Massenerhaltung:

$$\frac{d\rho}{dt} = -\rho \cdot \vec{\nabla} \cdot \vec{u} \quad (1.2)$$

mit  $\vec{\nabla} = \left( \frac{\partial}{\partial x}, \frac{\partial}{\partial y}, \frac{\partial}{\partial z} \right)$ .

### 1. Hauptsatz der Thermodynamik

Im Allgemeinen kann ein geschlossenes thermodynamisches System seine innere Energie  $dU$  durch Arbeit  $dW$  und Wärmeaustausch  $dQ$  verändern. Adiabatische Temperaturänderungen ( $dQ = 0$ ) werden demnach durch Expansion oder Kompression ( $dW = -pdV$ ) während der vertikalen Bewegung eines Luftmasseteilchens durch die thermodynamische Gleichung beschrieben:

$$\frac{dT}{dt} = \frac{1}{\rho \cdot c_p} \cdot \frac{dp}{dt} = \frac{R_d T}{c_p p} \cdot \frac{dp}{dt} \quad (1.3)$$

mit der spezifischen Wärmekapazität  $c_p$  [ $\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ ].

## Feuchteerhaltung

Die Feuchteerhaltung stellt den Massenerhalt des Wassers in der Atmosphäre sicher:

$$\frac{d\rho_w}{dt} = -\rho_w \cdot \vec{\nabla} \cdot \vec{u} + QS \quad (1.4)$$

mit der absoluten Feuchte  $\rho_w$  [ $\text{kg m}^{-3}$ ] und  $QS$  [ $\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$ ] repräsentativ als Quellen- und Senkenterm des Wassers durch Kondensation und Verdampfung.

## Impulserhaltung

Die Impulserhaltung folgt direkt aus den Newton'schen Axiomen und die zeitliche Änderung der Windgeschwindigkeit wird bestimmt durch die wirkenden Kräfte (Druckgradient, Schwerebeschleunigung, Corioliskraft und Reibung):

$$\frac{d\vec{u}}{dt} = -\frac{1}{\rho} \vec{\nabla} p + \vec{g} - 2\vec{\Omega} \times \vec{u} + \vec{F}_R \quad (1.5)$$

mit dem Rotationsvektor der Erde  $\vec{\Omega}$  [ $\text{s}^{-1}$ ].

Zur Vollständigkeit werden an dieser Stelle weitere abgeleitete Variablen aus den vier Kenngrößen vorgestellt, die für die Beschreibung des Zustandes der Atmosphäre von Bedeutung sind. Dazu gehört auch die spezifische Feuchte  $q_v$  [ $\text{gkg}^{-1}$ ], berechnet aus dem Dampfdruck  $e$  [hPa] über die relativen Feuchte  $RF$  [%] und den Sättigungsdampfdruck  $e_s$  [hPa]:

## Potentielle Temperatur $\theta$ [K]

Die potentielle Temperatur ist eine Erhaltungsgröße für trockenadiabatische Temperaturänderungen. Sie ist definiert als die Temperatur, die ein Luftpaket haben könnte, wenn es trockenadiabatisch auf einen Referenzdruck ( $p_0 = 1000$  hPa) gebracht würde.

$$\theta = T \cdot \left( \frac{p_0}{p} \right)^{R/c_p} \quad (1.6)$$

## Äquivalentpotentielle Temperatur $\theta_e$ [K]

Die äquivalentpotentielle Temperatur ist die Temperatur, die feuchte Luft annähme, wenn der gesamte darin enthaltene Wasserdampf bei konstantem Druck  $p$  vollständig kondensieren und die dabei freigesetzte Phasenumwandlungsenergie  $L_v$  [ $\text{Jkg}^{-1}$ ] ausschließlich der feuchten Luft zugeführt würde.

$$\theta_e = \theta \cdot \exp \left( \frac{q_v \cdot L_v}{c_p \cdot T} \right) \quad (1.7)$$

## Turbulenz

In der Meteorologie ist die PGS ein eigenes Forschungsfeld, weil hier andere dynamische Prozesse als in der freien Troposphäre (FT) von Bedeutung sind. Die PGS wird von dynamischen Interaktionen (u. a. Reibung, Impuls-, und Wärmeflüsse) mit der Erdoberfläche beeinflusst und reagiert auf Änderungen der Oberflächeneigenschaften in einer Zeitskala von etwa zwei Stunden (Stull, 1988).

Turbulenz ist der Hauptmechanismus für vertikale Transportprozesse (Energie-, Impuls- und Wärmeflüsse) und beinhaltet verschiedene Größenskalen von unregelmäßigen Eddies. Die Turbulenz ist dabei ungerichtet und unterliegt stochastischen Fluktuationen um einen mittleren Grundzustand und sie führt zur Homogenisierung von verschiedenen skalaren Größen (Temperatur, Feuchte, Impuls, Gase, Aerosole) innerhalb einer kurzen Zeit. Eine einfache deterministische Erfassung von Turbulenz ist nicht möglich, daher werden statistische Mittel zur Hilfe genommen. Dabei lässt sich jeder Zustand einer Eigenschaft in einer turbulenten Strömung beschreiben als Summe eines zeitlichen Mittelwertes und den turbulenten Abweichungen von diesem Mittelwert. Entsprechend dieses sogenannten Reynoldschen Ansatzes kann beispielhaft die horizontale Windgeschwindigkeit ( $u_i$ ) in einen mittleren Wind ( $\overline{u_i}$ ) und in Windfluktuationen ( $u'_i$ ) zerlegt werden (Stull, 1988).

$$u_i = \overline{u_i} + u'_i \quad (1.8)$$

Die Intensität dieser Windfluktuationen wird über die Varianz bestimmt.

$$\sigma_u^2 = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N [\overline{u'_i}]^2 = \overline{u'^2} \quad (1.9)$$

Zur Beschreibung der Turbulenz ergibt sich folgende Beziehung für die turbulente kinetische Energie (TKE):

$$\frac{TKE}{m} = \bar{e} = \frac{1}{2} [\overline{u'^2} + \overline{v'^2} + \overline{w'^2}] = \frac{1}{2} [\sigma_u^2 + \sigma_v^2 + \sigma_w^2] \quad (1.10)$$

Für  $TKE = 0$  ist eine Strömung laminar, wobei  $\bar{u}$ ,  $\bar{v}$ ,  $\bar{w}$  nicht null sein müssen. Die zeitliche Änderung von TKE kann über die vereinfachte Gleichung 1.11 bestimmt werden. Eine ausführliche Herleitung kann in verschiedenen Standardwerken der theoretischen Dynamik gefunden werden (u. a. Etling, 2008).

$$\frac{\partial \bar{e}}{\partial t} = \underbrace{-[\overline{u'\omega'} \frac{\partial \bar{u}}{\partial z} + \overline{v'\omega'} \frac{\partial \bar{v}}{\partial z}]}_I + \underbrace{\frac{g}{\theta_0} \overline{\omega'\theta'}}_{II} - \underbrace{\frac{\partial}{\partial z} (\overline{e'\omega'} + \frac{1}{\rho_0} \overline{p'\omega'})}_{III} - \underbrace{\epsilon}_V \quad (1.11)$$

Der Term *III* beschreibt den vertikalen Transport von TKE, während der Term *IV* für den horizontalen Transport steht. Beide Terme beschreiben daher hauptsächlich eine Umverteilung der TKE. Die Dissipation der TKE (Term V) wird durch die Umwandlung in Reibungswärme durch molekulare Viskosität unter der Annahme horizontaler Homogenität und Vernachlässigung großräumiger Vertikalbewegung vollzogen. Bereits diese vereinfachte Form zeigt, dass die Produktion der TKE in der PGS vor allem durch die thermische (Term II) und mechanische (Term I) Turbulenzgenerierung erzeugt wird:

Term II Einerseits kann die Turbulenz konvektiv erzeugt werden, etwa durch Erwärmung der bodennahen Schicht. Dadurch steigen (sinken) wärmere (kühle) Luftmassen auf (ab), und dieser vertikale Transport führt letztendlich zur Durchmischung der Luftmassen durch die Turbulenz (u. a. Stull, 1988).

Term I Andererseits wird Turbulenz mechanisch durch Windscherung generiert. Je näher eine Luftmasse einem Strömungshindernis (z.B. Reibung am Boden) kommt, umso geringer wird die horizontale Transportgeschwindigkeit.

### Turbulenter Transport

Des Weiteren hemmt oder fördert die atmosphärische Stabilität den turbulenten Transport und hat somit einen weitreichenden Einfluss auf die Vertikalstruktur meteorologischer und chemischer Größen in der PGS. Dabei sollte unbedingt unterschieden werden zwischen der großskaligen Advektion und dem turbulenten Fluss. Die Advektion wird bestimmt durch die Bewegungsgleichung der großskaligen Dynamik. Hingegen sind die turbulenten Flüsse die Transportprozesse auf sehr kleinen Skalen. Dies ist in Abbildung 1.1 schematisch für den Wärmefluss dargestellt. Unter labilen Bedingungen werden warme Luftmassen ( $\theta'(+) \rightarrow \omega'(+)$ ) nach oben ( $\omega'(+)$ ) und kühle Luftmassen ( $\theta'(-) \rightarrow \omega'(-)$ ) nach unten ( $\omega'(-)$ ) transportiert. Die Mittelwerte des Produktes  $\theta'\omega'$  verschwinden dabei nicht, sondern führen zum turbulenten vertikalen Wärmetransport. Die turbulente Energieerzeugung hängt vom Vorzeichen des turbulenten Wärmeflusses ab, der mit Gleichung [1.12] berechnet wird:

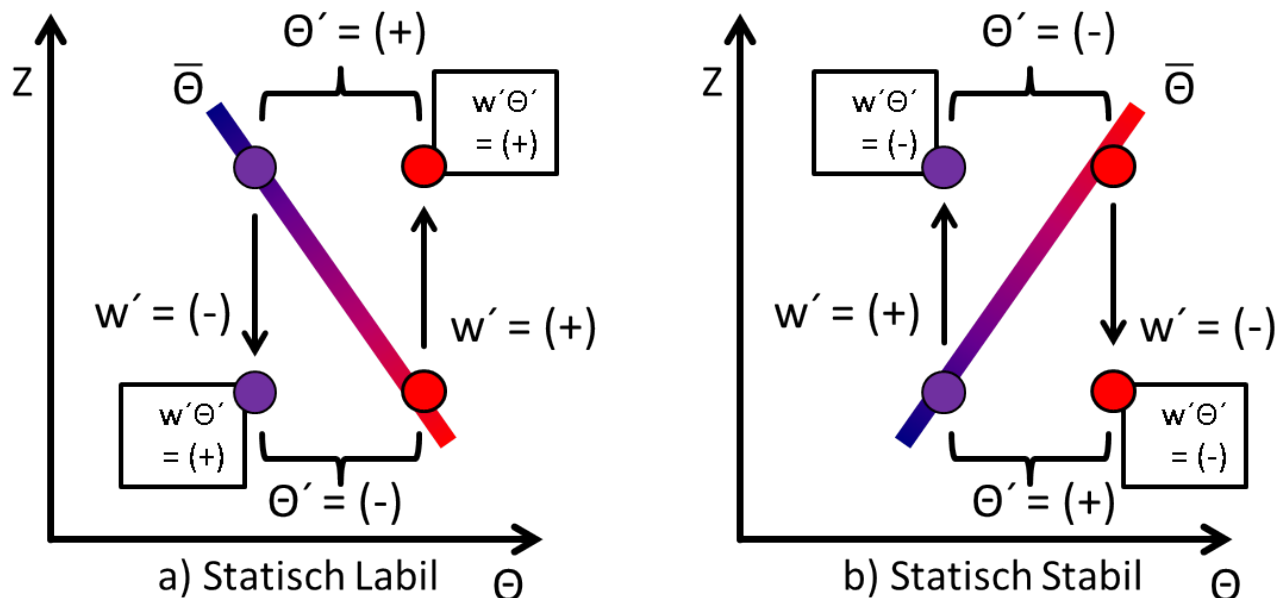
$$Q_H = \rho c_p \overline{\omega'\theta'} \quad (1.12)$$

Wird für den turbulenten Wärmefluss der Gradientenansatz gewählt, kann durch weitere Umformungen gezeigt werden, dass dieser vom Gradienten der potentiellen Temperatur abhängt (Etling, 2008):

$$\overline{\omega'\theta'} = -K \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad (1.13)$$

Damit folgt für den Einfluss der Auftriebskräfte auf die Änderungen der TKE:

$$\frac{\partial \bar{e}}{\partial t} = \frac{g}{\theta} \overline{\omega'\theta'} = -\frac{g}{\theta} K \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad (1.14)$$



**Abb. 1.1:** Schematische Darstellung zur Bestimmung der Flussrichtung für den Wärmefluss für den vertikalen Transport der mittleren potentiellen Temperatur. Luftpakete steigen (sinken) adiabatisch in die neue Umgebung ohne Mischung und sorgen für eine Umverteilung der Luftmassen: a) Labile Schichtung, b) Stabile Schichtung nach Stull (2000).

Neben dem turbulenten Transport von Wärme lässt sich mithilfe der Schubspannungsgeschwindigkeit  $u_*$  die mechanisch generierte Turbulenz unter statisch neutralen Bedingungen beschreiben:

$$u_* = [\overline{u'\omega'^2} + \overline{v'\omega'^2}]^{1/4} \quad (1.15)$$

Unter adiabatischen Verhältnissen stellt sich ein logarithmisch anwachsendes vertikales Windprofil ein. Der Betrag der Windgeschwindigkeit nimmt vom Boden bis in die Höhe stark zu und erreicht Werte von 70 bis 80% der reibungsfreien mittleren Strömungsgeschwindigkeit in der FT:

$$\bar{V} = \frac{u_*}{k} \ln\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad (1.16)$$

mit  $k = 0.4$  als Karmankonstante und  $z_0$  als Oberflächenrauigkeit. Um große inhomogene Flächen zu beschreiben, werden verschiedene Landschaftstypen in Rauigkeitsklassen eingeteilt (Wieringa, 1992).

Neben dem turbulenten Wärmefluss kann auch der turbulente Fluss ( $F_s$ ) eines anderen Stoffes (S, z.B.  $\text{CO}_2$ ) beschrieben werden.

$$F_s = \overline{\rho\omega'S'} \quad (1.17)$$

Um zu dieser einfachen Gleichung zu gelangen, müssen allerdings verschiedene Voraussetzungen (Stationaritäten von S, horizontale Homogenität, Massenerhaltung und keine Dichteschwankungen) erfüllt sein (Foken, 2006). Als direkte und zuverlässige Messmethode des turbulenten Austauschs von Wärme, Impuls und Spurengasen dient die Kovarianzmethode; wobei die enthaltenen Größen mit hinreichend schnellen Messgeräten direkt bestimmt und je nach Einsatzbedingungen notwendige Korrekturen durchgeführt werden müssen (Arya, 2001).

### Die atmosphärische Stabilität

Wie bereits gezeigt, fördert oder hemmt die atmosphärische Stabilität den turbulenten Vertikaltransport der skalaren Größen. Bei thermisch labiler Schichtung und dynamischen Instabilitäten wird der Vertikaltransport verstärkt. Hingegen hängt bei thermisch stabiler Schichtung die Stärke des Vertikaltransports von den dynamischen und thermodynamischen Eigenschaften ab. Darauf aufbauend lässt sich aus

Schichtung	$\frac{\partial T}{\partial z}$	$\frac{\partial \theta}{\partial z}; \frac{\partial \theta_e}{\partial z}$	$Ri_B$
<b>stabil</b>	$< -\Gamma$	$> 0$	$> 1$
<b>neutral</b>	$= -\Gamma$	$= 0$	-
<b>bedingt labil</b>	$-\Gamma_m < \frac{\partial T}{\partial z} < -\Gamma$	$\frac{\partial \theta}{\partial z} > 0; \frac{\partial \theta_e}{\partial z} < 0$	-
<b>labil</b>	$> -\Gamma$	$< 0$	$< 0.25$

**Tab. 1.1:** Zusammenhang zwischen der Temperaturschichtung und der Bulk-Richardson-Zahl.

dem Verhältnis der beiden turbulenzgenerierenden Terme (I und II) die dynamische Stabilität einer Strömung mit der Richardson-Zahl (RI, engl. Richardson number) definiert:

$$RI = -\frac{TermII}{TermI} = \frac{\frac{g}{\theta_v} \overline{\omega' \theta'}}{u' \omega' \frac{\partial u}{\partial z} + v' \omega' \frac{\partial v}{\partial z}} \quad (1.18)$$

Die Richardson-Zahl ist aber nur für turbulente Strömungen bestimmt, da unter stabilen Bedingungen die Terme  $\overline{u' \omega'}$  und  $\overline{v' \omega'}$  verschwinden (Stull, 1988). Unter der Annahme, dass die turbulenten Flüsse der skalierten Größen proportional zu den Gradienten der skalaren Größen sind, kann die Gradient-Richardson-Zahl ( $RI_G$ , engl. gradient Richardson number) unter allen atmosphärischen Bedingungen verwendet werden:

$$RI_G = \frac{\frac{g}{\theta_v} \frac{\partial \theta_v}{\partial z}}{\left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 + \left(\frac{\partial v}{\partial z}\right)^2} \quad (1.19)$$

Mit einer Approximation der  $RI_G$  lässt sich die Bulk-Richardson-Zahl ( $RI_B$ , engl. bulk Richardson number) aus den Differenzen der Größen ( $\theta_v, u, v$ ) über die Höhe der Vertikalschicht  $\Delta z$  berechnen (Garratt, 1992):

$$RI_B = \frac{g}{\theta_v} \frac{\Delta \theta_v \Delta z}{(\Delta u)^2 + (\Delta v)^2} \quad (1.20)$$

Aus experimentellen Studien ist bekannt, dass ein laminarer Strömungszustand turbulent wird, wenn  $RI_B$  unter eine kritische Schwelle ( $RI_C$ ) von  $RI_C = 0.25$  fällt, und dann als dynamisch instabil bezeichnet wird (Stull, 1988).

Zusätzlich zur dynamischen Stabilität kann die Atmosphäre auch mit der statischen Stabilität mit verschiedenen Temperaturschichtungen eingeteilt werden. Die statische Stabilität gibt an, ob der Auftrieb bei Auslenkung eines Luftpakets, welcher durch die Temperaturdifferenz zwischen dem Paket und der Atmosphäre entsteht, ausreicht, um ein weiteres Aufsteigen zu ermöglichen (Henry, 2000). Die Abkühlungsrate eines aufsteigenden Pakets unter den oben getroffenen Annahmen wird als trockenadiabatischer Temperaturgradient ( $\Gamma = 9.8 K km^{-1}$ ) bezeichnet. Tritt beim Aufsteigen eines Pakets Kondensation ein, folgt es dem feuchtadiabatischen Temperaturgradienten ( $\Gamma_m = 6.5 K km^{-1}$ ). Der Stabilitätszustand kann dann mit dem Temperaturgradienten der äquivalentpotentiellen Temperatur  $\theta_e$  bestimmt werden (Bolton, 1980). Zusammengefasst sind in Tab. 1.1 verschiedene Maßzahlen zur Beschreibung der Stabilität und der Zusammenhang zum Turbulenzverhalten dargestellt.

### Tagesgang der planetaren Grenzschicht

Der idealisierte Tagesgang der planetaren Grenzschicht kann durch die vertikale Struktur der virtuellen potentiellen Temperatur dargestellt werden (Abb. 1.2). Dazu können die Profile durch nicht-lokale Klassifizierung der Stabilität in verschiedene Schichten eingeteilt werden: die konvektive Grenzschicht (PGS, häufig auch Mischungsschicht oder turbulente Grenzschicht), die stabile bodennahe Schicht (SBS, oder stabile Schicht) und die Residualschicht (RS) (Abb. 1.3). Hier wird der Vollständigkeit halber ein kurzer Abriss der Grenzschichtstruktur präsentiert, ausführliche Darstellungen finden sich in den Lehrbüchern Stull (1988); Seinfeld and Pandis (1997); Arya (2001); Wallace and Hobbs (2006).

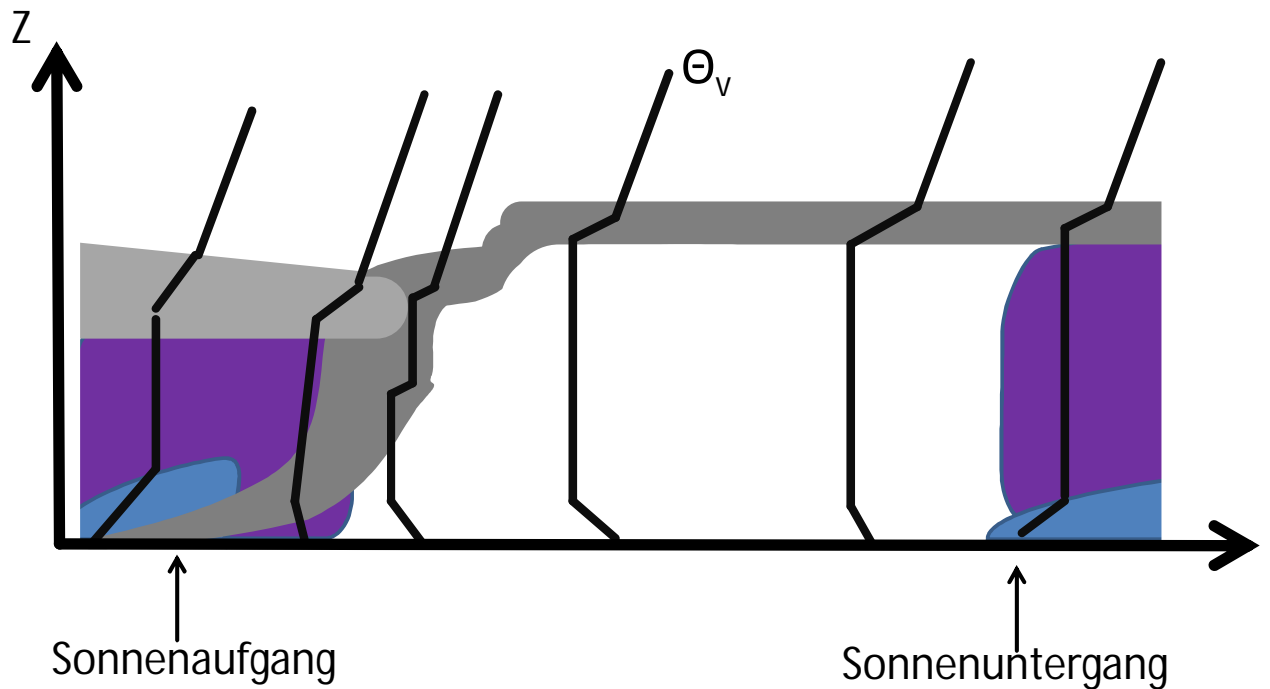


Abb. 1.2: Tagesgang der virtuellen potentiellen Temperatur im idealisierten Grenzschichtmodell nach Stull (1988).

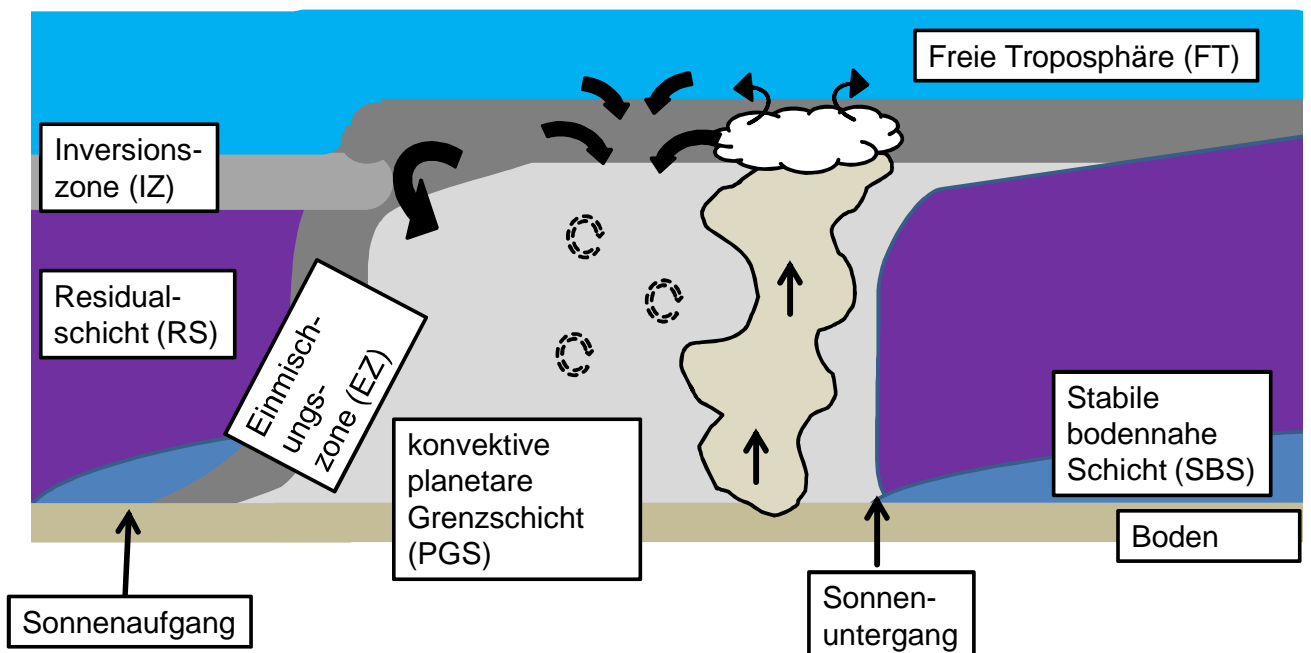
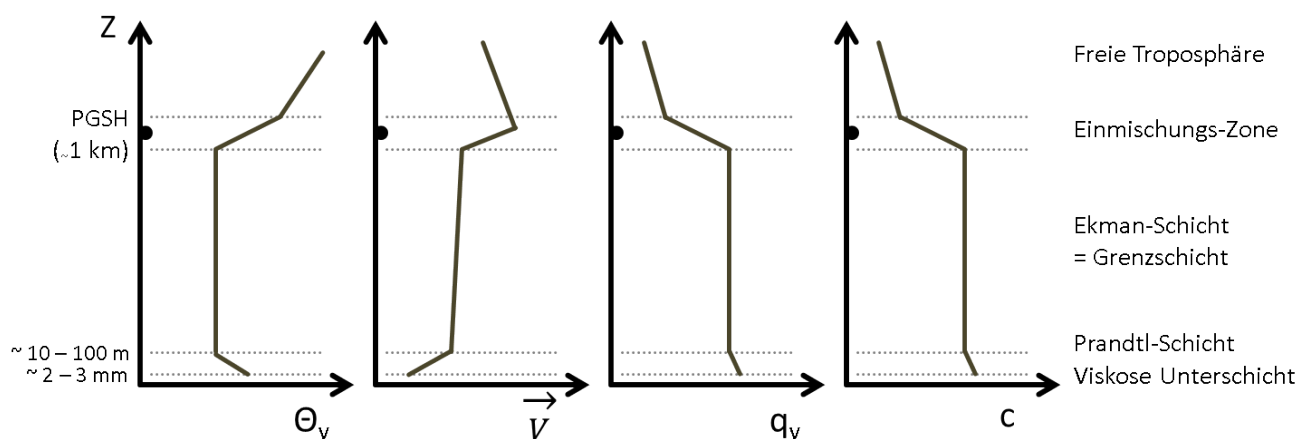


Abb. 1.3: Bezeichnung der einzelnen Schichten der planetaren Grenzschicht, erweitert durch die typischen Prozesse, die zum Grenzschichtwachstum beitragen; thermische Hebung (dünne Pfeile), Einmischung aus der RS/FT (dicke Pfeile) und Turbulenz in der PGS (Kreise).



**Abb. 1.4:** Untergliederung der atmosphärischen Grenzschicht und idealisierte Mittelwerte der potentiellen Temperatur  $\theta_v$ , der Windgeschwindigkeit  $V = u^2 + v^2$ , der spez. Feuchte  $q_v$  und für einen Tracer mit Quellen am Boden  $C$  nach Driedonks and Tennekes (1984). Die Höhe der planetaren Grenzschicht (PGSH) liegt bei ca. 1 km.

### Die konvektive Grenzschicht

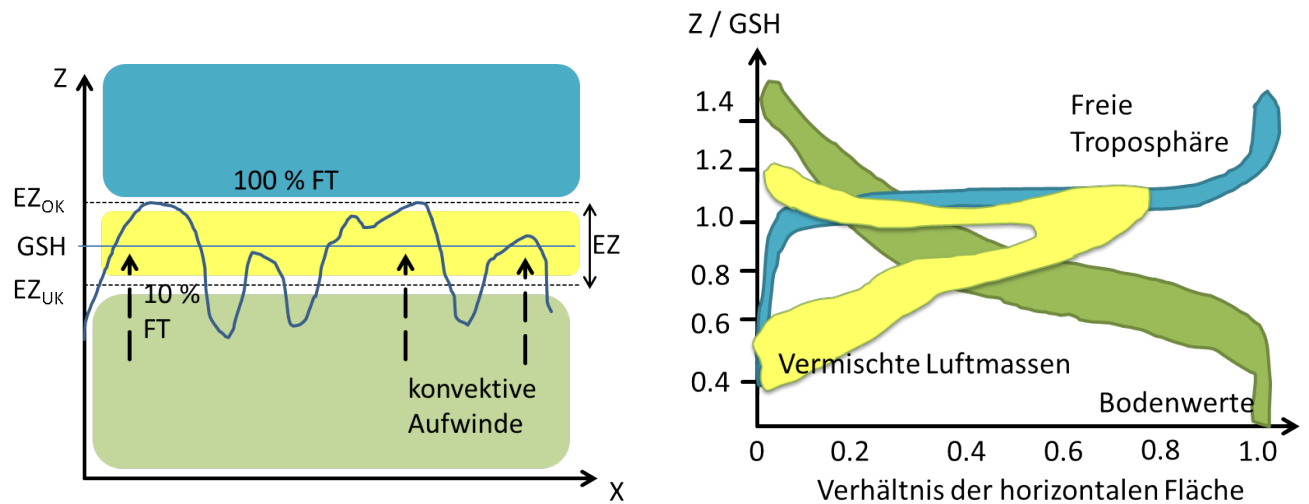
Am Tag führt die wärmende Einstrahlung der Sonne zur Generierung von thermischer Turbulenz und konvektiver Hebung innerhalb der PGS, während kühlere Luftmassen sinken. Diese Form des vertikalen Austauschs führt zu intensiver turbulenter Mischung, wodurch die spezifische Feuchte, potentielle Temperatur und Spurengase homogen verteilt werden. Exemplarisch sind in Abbildung 1.4 Profile der virtuellen potentiellen Temperatur, horizontalen Windgeschwindigkeit, spez. Feuchte und ein Spurenstoff mit Quellen am Boden dargestellt.

Direkt über der Erdoberfläche liegt die nur wenige Zentimeter mächtige viskose Unterschicht. In ihr erfolgt der Transport von Wärme und Feuchte ausschließlich durch molekulare Diffusion, und die Luftströmung ist nahezu laminar. Über dieser Schicht schließt sich die Prandtl-Schicht an, die etwa 10% der Grenzschicht ausmacht. Innerhalb der Prandtl-Schicht lassen sich die Profile der horizontalen Windgeschwindigkeit, der potentiellen Temperatur, der spezifischen Feuchte und anderer passiver Tracer mittels universeller Funktionen beschreiben, da in dieser Schicht der turbulente Fluss der genannten Variablen näherungsweise höhenkonstant ist und der Einfluss der großräumigen Druckverteilung und der Erdrotation vernachlässigbar.

### Die Inversions- und Einmischungsschicht

Oberhalb dieser konvektiven Grenzschicht befindet sich häufig eine stabile Temperaturinversionsschicht (-Zone, IZ). Die IZ kann durch (1) großskalige Subsidenz, (2) Warmluftadvektion in der FT, (3) Strahlungskühlung am Boden, (4) frontale Inversion entstehen. Je nach Inversionsstärke kann somit effektiv der vertikale Austausch mit der FT gehemmt werden. Dennoch können Mischungsprozesse am Oberrand der PGS mit der FT in einer dünnen Schicht, der Einmischungsschicht (-Zone, EZ), stattfinden (Abb. 1.5). Diese EZ ist dabei keine geschlossene und undurchdringliche Schicht wie die IZ, sie variiert nach Ort und Zeit, je nachdem, wo thermische Aufwinde überschießen oder Luftmassen aus der FT eingemischt werden. Der Oberrand der EZ wird dabei von der maximalen Höhe der thermischen Aufwinde bestimmt, während die Basis der EZ häufig keine klare Separation zur PGS zeigt. Wenn Luft aus der turbulenten PGS in die laminar geschichtete FT transportiert wird, müssen durch die Massenerhaltung auch Luftmassen aus der laminaren Schicht in die turbulente Schicht zurücktransportiert werden. Dieser irreversible Prozess der Einmischung sorgt somit für eine Veränderung der Luftmassen in der PGS und EZ (Abb. 1.5). Aus Tankexperimenten (Deardorff, 1980) und Flugzeugbeobachtungen (Crum et al., 1987) konnten dabei die Anteile dieser drei Luftmassen bestimmt werden, wobei der Anteil der verschmischten Luftmasse an der Grenzschichthöhe maximal ist. Deardorff (1980) fasst demnach die PGS und EZ als eine Schicht zusammen.





**Abb. 1.5:** Links: Definition der Einnischungszone (EZ) aus dem Verhältnis des Betrags von Luftmassen aus der freien Troposphäre (FT). Rechts: Verhältnis von Luftmassen aus der Grenzschicht, freien Troposphäre und vermischten Luftmassen in der Einnischungszone im Verhältnis zur Grenzschichthöhe nach Stull (1988).

### Die stabile Schicht

Die PGS ist immer dann stabil geschichtet, wenn eine wärmere Luftmasse über einer kühleren Luftmasse liegt. Diese stabile Schicht (SBS) ist häufig in der Nacht zu beobachten, wenn langwellige Abstrahlung zu einer Kühlung der Bodenschicht führt. Außerdem kann sie sich auch am Tag durch Advektion von warmen Luftmassen über eine kühlere Luftmasse formieren. Die Mächtigkeit dieser Schicht variiert von einigen Metern bis zu wenigen 100 Metern. Die Balance zwischen mechanisch generierter Turbulenz und Dämpfung durch die statische Stabilität ist äußerst variabel und von Fall zu Fall verschieden und führt zu stabilen Schichten, die sporadisch turbulent oder laminar sind. Wegen dieser Komplexität existieren verschiedene Formen zur Beschreibung und Modellierung der SBS, eine Übersicht zum aktuellen Stand der Forschung ist im Review-Artikel Mahrt (2014) zu finden.

### Die Residualschicht

Wenn die thermisch generierte Turbulenz mit Sonnenuntergang zusammenbricht, konserviert die Luftschicht ihre momentane chemische Zusammensetzung. Die ehemalige konvektive Schicht des Tages, nun entkoppelt vom Boden, wird Residualschicht (RS) genannt, sie ist neutral geschichtet. Die Höhe der RS ist vergleichbar zur Höhe der konvektiven Schicht, wenn die IZ erhalten bleibt. Ein vertikaler Austausch zwischen der SBS und der RS ist gehemmt. Häufig werden in diesem Zusammenhang erhöhte Windgeschwindigkeiten oberhalb der SBS beobachtet. Dadurch können Luftmassen in der RS je nach Stärke der IZ größere Distanzen zurücklegen und auch in die FT transportiert werden. Mit Sonnenaufgang wiederholt sich dieser Tageszyklus.

### Definition der Grenzschichthöhe

Als Obergrenze der PGS wird üblicherweise diejenige Höhe definiert, welche die stabile Schichtung der FT von der turbulenten Schichtung in der PGS separiert (Stull, 1988). Luftmassen innerhalb der PGS stehen somit in der direkten Wechselwirkung mit dem Erdboden, und Störungen haben in weniger als ein bis zwei Stunden einen sichtbaren Einfluss an der Erdoberfläche und auf die Struktur der unteren Atmosphäre. Es gibt aber bis jetzt keine eindeutige und klare Definition zur Bestimmung der Grenzschichthöhe (PGSH) (Seibert et al., 2000). Die PGSH wird häufig mit der Höhe einer Temperaturinversion in Verbindung gebracht, welche als Transportbarriere zwischen der FT und der PGS wirkt. Atmosphärische Gase und Aerosole werden somit zwischen dem Boden und der FT festgehalten. Relativ hohe Konzentrationen von Gasen und eine hohe Anzahl von Partikeln sammeln sich deshalb in der PGS an, während die FT unverschmutzt bleibt (Abb. 1.4).

Die PGSH kann somit aus unterschiedlichen Messgrößen (Temperatur, Luftfeuchtigkeit, Wind, Turbulenz, Aerosol- und Spurengasverteilung) mit verschiedenen Messsystemen (Radiosonden, Flugzeug, SODAR, LIDAR, Ceilometer, Windprofiler) ermittelt werden. Die praktischen und theoretischen Probleme, die sich

für die Bestimmung der PGSH ergeben, und auch die verschiedenen Definitionen können im Detail in den Lehrbüchern gefunden werden (Stull, 1988; Garratt, 1992; Seibert et al., 1997, 1998). Die Autoren weisen aber auch darauf hin, dass die Bestimmung der PGSH häufig von der Verfügbarkeit von Messinstrumenten und -daten abhängt. Scharfe Gradienten in den Vertikalprofilen der Messgrößen können ein einheitlicher Indikator für die PGSH sein (Abb. 1.4). Aber in Fällen von schwacher Turbulenz, schwachen Vertikalgradienten und Advektion einer anderen Luftmasse kann die typische Vertikalstruktur der Messgrößen verschmieren oder sogar umkehren und eine unterschiedliche Interpretation der PGSH je nach Methode und Variable bedingen. Eine Zusammenfassung von Methoden zur Bestimmung der PGSH mit verschiedenen Instrumenten und zu unterschiedlichen atmosphärischen Bedingungen ist von Seibert et al. (2000) vorgelegt worden.

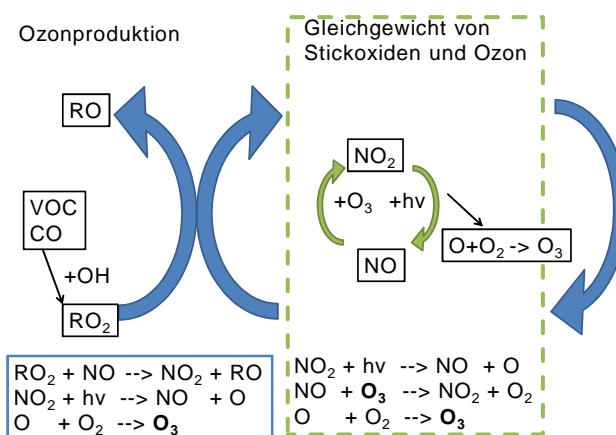
### 1.3 Die Bedeutung von Spurengasen in der Atmosphäre

Im folgenden Unterkapitel wird die Bedeutung von verschiedenen Spurenstoffen, die für diese Arbeit von Relevanz sind, besprochen. Die Zusammenfassung orientiert sich an Seinfeld and Pandis (1997) und darin angegebener Literatur. Die trockene Atmosphäre setzt sich (chemisch) zu 99.9% aus Stickstoff ( $N_2$ ), Sauerstoff ( $O_2$ ) und dem Edelgas Argon (Ar) zusammen. Die restlichen 0.1% bestehen aus sogenannten Spurenstoffen, wobei Kohlenstoffdioxid ( $CO_2$ ) den größten Anteil ausmacht. Im Oktober 2014 beträgt der Anteil von  $CO_2$  in der Atmosphäre 397 ppmv (engl. parts per million per Volume, d.h. zehntausendstel Prozent).  $CO_2$  ist neben Methan ( $CH_4$ ) ein wichtiger Spurenstoff im globalen Kohlenstoffkreislauf und beide dienen als wichtige Treibhausgase für den natürlichen Treibhauseffekt.

Das Gleichgewicht von  $CO_2$  zwischen den verschiedenen Sphären (Atmosphäre, Lithosphäre, Ozean und Biosphäre) wird bestimmt durch sehr langsame Prozesse wie Verwitterungsprozesse, Plattentektonik und Vulkanismus. Jedoch spielen gerade die schnelleren Austauschprozesse (Stunden bis Jahre) zwischen der Atmosphäre und der Ozeanoberfläche oder der Biosphäre (Landnutzung) eine wichtige Rolle für den atmosphärischen  $CO_2$ -Gehalt. Darüber hinaus variiert das  $CO_2$ -Mischungsverhältnis stark je nach geographischen, meteorologischen, jahres- und tageszeitlichen Bedingungen. Im nordhemisphärischen Spätsommer ist daher ein  $CO_2$ -Minimum und im Spätwinter ein  $CO_2$ -Maximum zu beobachten. Des Weiteren ist  $CO_2$  sehr reaktionsträge und hat sowohl in der Troposphäre als auch in der Stratosphäre eine lange Lebensdauer, sodass aufgrund von Menschen verursachter anthropogener Verbrennungsvorgänge die globalen  $CO_2$ -Mischungsverhältnisse jährlich um rund 2 ppmv zunehmen (IPCC, 2007).

Ein weiteres Spurengas, das durch unvollständige Verbrennungsprozesse entsteht, ist Kohlenstoffmonoxid (CO). Es hat in der Troposphäre sowohl natürliche (Oxidation von  $CH_4$ ) als auch anthropogene (Verbrennung fossiler Brennstoffe) Quellen. Eine Hauptsenke für CO ist die Oxidation durch das OH-Radikal zu  $CO_2$ . Alle weiteren Senken können demgegenüber vernachlässigt werden, sodass die Verweilzeit von CO in der Atmosphäre etwa sechs bis acht Wochen beträgt. CO gehört somit zu den langlebigeren reaktiven Spurengasen. Mit dieser Eigenschaft dient CO als Tracer (Leitsubstanz) zur Untersuchung des Transports einer Luftmasse.

Im Gegensatz zu den vorherigen Spurengasen hat Ozon ( $O_3$ ) keine direkten Emissionsquellen.  $O_3$ -Bildung und -Abbau stehen im Gleichgewicht, wobei das  $O_3$ -Mischungsverhältnis vom Verhältnis der Stickstoffoxide ( $NO_2$ , NO), flüchtigen or-



**Abb. 1.6:** Schematische Darstellung von photochemischen Gleichgewicht zwischen Ozon mit Stickoxiden (grüne Pfeile). Erhöhte Ozonproduktion durch zusätzliche Peroxyradikalen ( $RO_2$ ) in der Troposphäre (blaue Pfeile).

ganischen Verbindungen (VOC), sowie der Sonnenintensität abhängt. Dieses Gleichgewicht wird durch andere sehr reaktive Spurengase in der PGS gestört, sodass bei ausreichender Einstrahlung und bestimmten Mischungsverhältnissen von organischen Substanzen (VOC)  $O_3$  produziert wird (Abb. 1.6). In der Nacht wird  $O_3$  durch Deposition und der Nachtchemie wieder abgebaut. Ozon ist ein toxisches Gas und wirkt ab einem Mischungsverhältnis von 80 ppbv gesundheitsschädlich (Guicherit et al., 1988), außerdem ist es ein wirksames Treibhausgas.

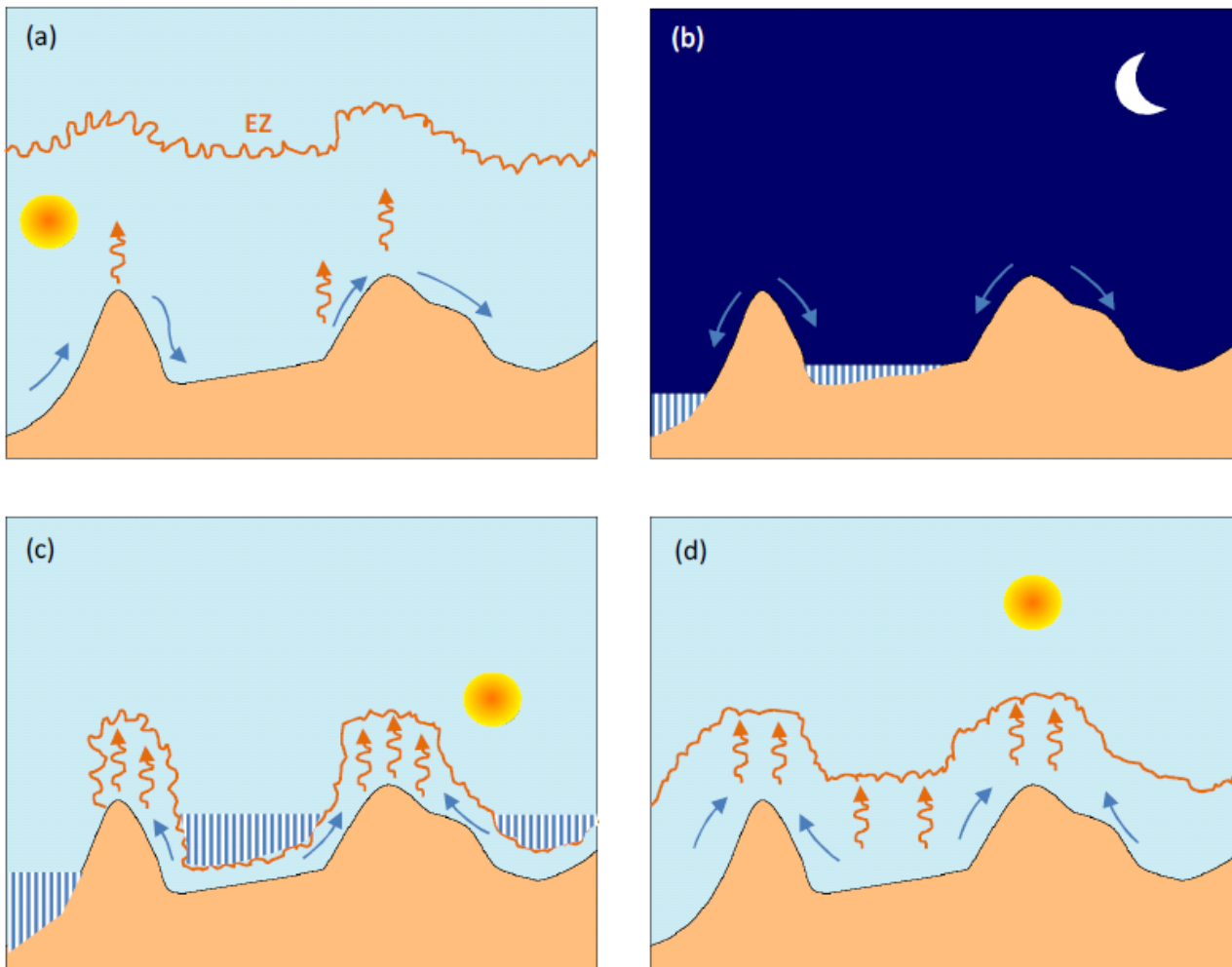
Neben den Spurengasen können Aerosolpartikel auch das Wetter (Wolkenbildung, Niederschlag), Klima (Strahlungsabsorption und -streuung) und chemische Prozesse (Veränderung von chemischen Umsetzungen, Nukleation) weltweit beeinflussen. Ein Aerosol ist eine Zusammenfassung von festen oder flüssigen Schwebeteilchen in einem Gas. Entsprechend wird von primären Aerosolen (Staub, Seesalz etc.) gesprochen, die direkt in die Atmosphäre transportiert werden, und von sekundären Aerosolen, die durch homogene Reaktionen Aerosolpartikel erzeugt werden. Demnach sind die Hauptquellen der Aerosole am Boden zu finden und können wie die Spurengase in der Grenzschicht akkumulieren. Als ein aerosolbezogenes Maß eignet sich dazu die Gesamtpartikelanzahlkonzentration ( $N$ ) zu betrachten. Typische Werte sind  $N < 100 \text{ cm}^{-3}$  in Reinluftgebieten,  $N = 1000$  bis  $10000 \text{ cm}^{-3}$  in ländlichen Regionen Mitteleuropas und  $N = 10^4$  bis  $10^5 \text{ cm}^{-3}$  in Innenstadtbereichen. Aktuelle Richtliniendiskussionen belegen zudem, dass nicht die Masse, sondern die Anzahlkonzentration für aerosolbedingte Gesundheitseffekte von Bedeutung ist.

## 1.4 Die planetare Grenzschicht über komplexem Gelände

Die planetare Grenzschicht über komplexem Gelände ist deutlich weniger gut erforscht, als über flachem und homogenem Terrain (Arya, 2001). Aufgrund der unterschiedlichen Erwärmung der bodennahen Luftmassen im Tal, am Hang und auf der Bergkuppe werden häufig periodische Wechsel der Windverhältnisse beobachtet (Defant, 1949). Die geländefolgenden Luftmassen interagieren daher mit den darüber liegenden Luftmassen auf verschiedenen modifizierten Transportwegen, und dies kann zu einem veränderten Tageszyklus der PGS führen (De Wekker, 2002). Diese lokalen Windsysteme resultieren aus den unterschiedlichen Erwärmungen der bodennahen Luftmassen auf dem Berg und im Tal und sind schematisch in Abb. 1.7 nach Whiteman (2000) dargestellt. Vor Sonnenuntergang ist eine nahezu homogene Grenzschicht über den Tälern und den Bergen zu beobachten und die Luftmassen werden durch die großskalige Zirkulation transportiert. In der Nacht kühlen die Luftmassen in den Tälern schneller, als auf den Gipfeln ab und werden talwärts transportiert. Es bildet sich eine IZ über dem Tal, während die Bergkuppe sich in der RS oder FT befindet. Am Morgen erwärmen sich die hangnahen Luftschichten gegenüber der FT stärker und beginnen, am Hang aufzusteigen. Ersatzweise strömt Luft aus den Tallagen nach und transportiert die akkumulierten Luftmassen aus den Tälern zur Bergkuppe. Durch Konvektion werden diese Luftmassen oberhalb der IZ in die FT transportiert. Das konvergente Ausströmen der Luftmassen aus den Tälern wird kompensiert durch absinkende Luftmassen über den Tälern und führt zu einer zusätzlichen Verstärkung der Inversion über dem Tal. Dadurch entstehen große Differenzen zwischen den Grenzschichthöhen über dem Berg und dem Tal auf relativ geringen horizontalen Distanzen (Hasel, 2006). Erst wenn die Inversion über dem Tal durch thermische Konvektion und Einmischung beginnt anzuwachsen, kommt es zu einer Vereinigung der PGSH über Tal und Berg und es kann von einer homogenen PGSH gesprochen werden. Dementsprechend ist die Analyse von Messungen in komplexem Gelände stets abhängig von der genauen Kenntnis der lokalen Zirkulationssysteme.

## 1.5 Einfluss von Zyklonen auf den Ferntransport von Grenzschichtluftmassen

Im Folgenden wird ein kurzer Überblick der Prozesse gegeben, die für den Ferntransport von PGS-Luftmassen relevant sind. Es ist bekannt, dass Luftmassen in Hochdruckgebieten in Bodennähe divergieren. Die Massenerhaltung führt zu einem großskaligen abwärtsgerichteten Vertikaltransport (Subsi-

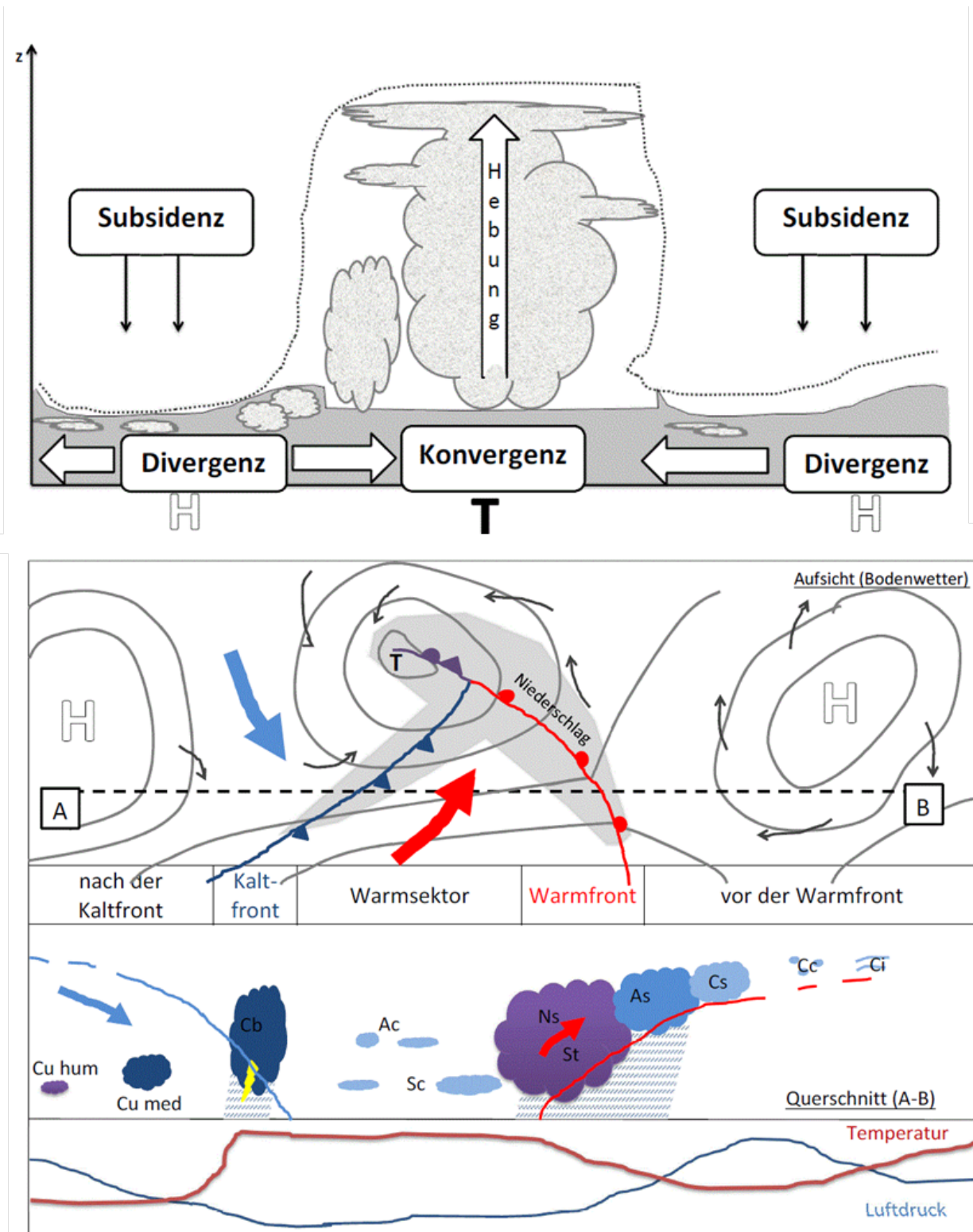


**Abb. 1.7:** Tageszeitliche Entwicklung der Windstrukturen über einem komplexen Gelände: a) Nachmittag, b) Nacht, c) Sonnenaufgang und d) Morgen. Die gewellten Pfeile stellen die Konvektion dar, die blauen Pfeile die Windrichtung. Die Höhe der Einmischungszone (EZ) markiert die Oberkante der Grenzschicht nach Whiteman (2000).

denz), und umgekehrt verhält sich dies in der Nähe von Tiefdruckgebieten (Abb. 1.8). Unter Hochdruckeinfluss ist eine wohl definierte PGSH über wolkenfreien Regionen zu beobachten. Über Land ist die Struktur der PGS gut dokumentiert und folgt dem bereits vorgestellten Tageszyklus. Unter dem Einfluss eines Tiefs wird die PGSH (über Land) durch die Kaltlufteinströmung hinter der Front beeinflusst. Nach ein oder zwei Tagen, wenn auch die Wolkenformationen der Front verschwunden sind, ist bedingt durch die Einstrahlung am Boden wieder ein Tagesgang der PGSH zu beobachten. Neuere experimentelle Studien von Persson (u. a. 2005) zeigen, dass die Bodenreibung, wie auch die unterschiedlichen Wärmeflüsse durch verschiedene Bodeneigenschaften, einen Einfluss auf die Entwicklung von Zyklonen und die Vertikalstruktur in der Nähe der Fronten haben können, was in numerischen Studien bestätigt wurde (u. a. Adamson et al., 2006; Beare, 2007; Muir and Reeder, 2010).

Sinclair et al. (2009) konnten zeigen, dass im Warmsektor einer idealisierten Zyklone die Luftmassen aus der PGS innerhalb eines Tages komplett in die FT transportiert werden können. Häufig werden oberhalb dieser neuen PGS noch Reste der ehemals gehobenen PGS gefunden, und dies resultiert in Mehrfachinversionsschichten (Wallace and Hobbs, 2006).

In Regionen unter Tiefdruckeinfluss herrschen größere Aufwinde (z. B. in der Nähe von Fronten und bei konvektiven Zellen) und Luftmassen können effektiv aus der PGS in die FT gehoben werden (Hov and Flatoy, 1997; Purvis, 2003; Sinclair et al., 2010). Dies resultiert in erhöhten Mischungsverhältnissen von Spurenstoffen und Aerosolen in der FT; eine Bestimmung der PGSH verkompliziert sich unter solchen



**Abb. 1.8:** Schematische Darstellung der Grenzschichthöhe beeinflusst durch die synoptische Situation. Im Querschnitt die Frontstrukturen, die zugehörigen Wolkentypen und der Einfluss auf die bodennahen Luftmassen zusammengefasst aus Slade (1968); Stull (1988); Whiteman (2000); Sönning and Keidel (2007).

Bedingungen wegen der fehlenden Gradienten in den Vertikalprofilen (Stull, 1988).

Diese gehobenen Luftmassen können durch den geostrophischen Wind in der FT weit transportiert werden und in ungestörten Regionen wieder in die PGS eingemischt werden. Der Ferntransport von gehobenen Luftmassen aus der PGS der USA in die FT spielt gerade beim transatlantischen Transport von Spurenstoffen eine zentrale Rolle für Europa (Wild and Akimoto, 2001). Demzufolge wurden viele weitere Studien und Messkampagnen in den letzten Jahren durchgeführt, um die Vielfalt verschiedener Prozesse in

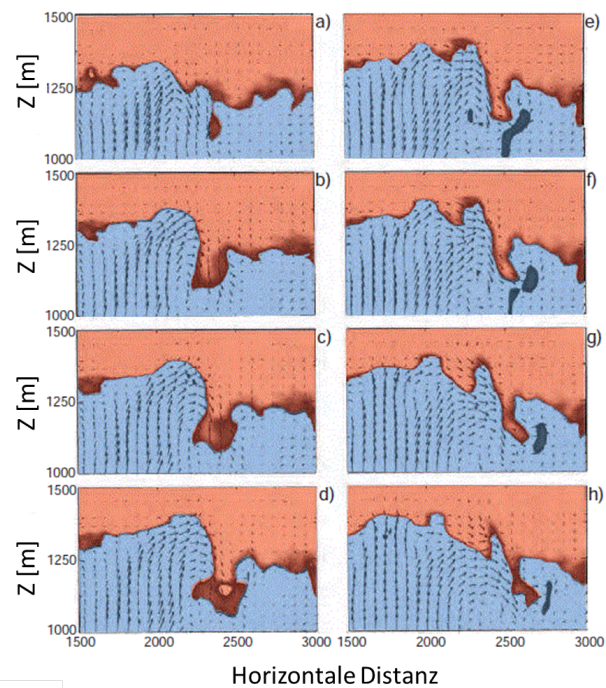
Verbindung mit dem interkontinentalen Ferntransport zu untersuchen, speziell über dem Atlantik (Stohl et al., 2002; Cooper et al., 2002; Esler, 2003; Huntrieser, 2005). Auch Intrusion aus der Stratosphäre in die Troposphäre kann einen Einfluss auf die Grenzschicht haben (Lefohn et al., 2011).

## 1.6 Einmischen von Luftmassen aus der freien Troposphäre in die Grenzschicht

Das Anwachsen der turbulenten PGS in den Bereich der FT in den Morgen- und Mittagsstunden durch Mischung in der EZ ist ein gut dokumentierter Prozess, dessen einfache Ursache in der Zunahme der solaren Einstrahlung am Erdboden gefunden wurde (Stull, 1988). Dabei dient das Einmischen als zusätzliche Quelle für die Erwärmung der PGS. Im Allgemeinen ist der Feuchtegehalt in der FT geringer als in der PGS und die Einmischung trockener Luftmassen ist als Verdünnung zu beobachten. Die detaillierte Betrachtung zeigt, dass weitere Prozesse (u. a. vertikaler turbulenter Wärme- und Impulsfluss, die Stabilität und die großskaligen Vertikalbewegungen) zum Grenzschichtwachstum und der Einmischung beitragen (u. a. Driedonks and Tennekes, 1984; Chon and Angevine, 2000). Dazu kommen noch weitere Faktoren, wie die Grenzschichtstruktur vom Vortag und deren Entwicklung über Nacht (Fochesatto et al., 2001; Blay-Carreras et al., 2014), die horizontale Advektion (De Wekker et al., 2004), das Vorhandensein von Wolken (Moeng et al., 1999) und orographisch induzierte Effekte, wie Sekundärzirkulationen (Kalthoff et al., 1998).

Eine Vielzahl experimenteller Studien (u. a. EXCOMPTE (Cros et al., 2004), TRANSALP (Desiato et al., 1998), TRACT (Zimmermann, 1995)) untersucht den Austausch bzw. den Transport von Luftverschmutzung zwischen der PGS und FT. Weitere experimentelle Studien befassen sich mit der Untersuchung der mikroskaligen Prozesse innerhalb der EZ (auch in Schichtwolken) mit hochfrequenten Temperatur- und Feuchtemessungen, wobei die zeitliche Auflösung limitiert ist (u. a. Malinowski et al., 2013). Ein weiterer Fortschritt sind neuere kontinuierliche Messungen mit LIDAR-Verfahren zur Erhebung des Transports von Wasserdampf in Verbindung mit konvektiven Aufwinden (Hanssen, 1999). Dennoch ist die Zahl der Veröffentlichungen zu Einmischungsvorgängen weiterhin sehr gering (z. B. Jonas, 1990; Flamant and Pelon, 1997; Davis et al., 1997; Stevens et al., 2003; Träumner et al., 2011). Hinzu kommt die hohe räumliche, vertikale und zeitliche Variabilität der EZ, die ein weiteres Problem für Messungen und Analysen ist.

Weitere Studien zur Einmischung konnten mit Modellen durchgeführt werden, wobei erst die Weiterentwicklung von Grobstruktursimulationen (engl. large eddy simulation, LES) es ermöglichte, turbulente Strukturen zu berechnen. Beispielhaft ist in Abbildung 1.9 eine Modellsimulation dargestellt, die demonstriert, wie Luftmassen aus der FT in die PGS durch die Formierung von Filamenten eingemischt werden (Sullivan et al., 1998), und dieser Prozess konnte mit LIDAR-Messungen auch bestätigt werden (Träumner et al., 2011). Die Untersuchung von Transportprozessen zwischen der PGS und der FT mit Modellen verlangt demnach von den meteorologischen Variablen eine feine Auflösung, um die komplexen Transportprozesse zu simulieren. Dabei sind die Kenntnis der aktuellen PGSH sowie die Berücksichtigung von Konvektion, Einmischung und turbulenter Mischung von großer Bedeutung (Geels et al., 2007). Neben der Feuchte



**Abb. 1.9:** Modellsimulationen von Einmischung (dunkelorange) aus der freien Troposphäre (orange) in die Grenzschicht (blau) über einen Simulationszeitraum von 6 Minuten. Die Pfeile zeigen die Bewegungsrichtung des Fluids aus Sullivan et al. (1998).

und Temperatur ist auch von Interesse, wie sich Spurengase in der EZ vermischen. Durch die Verknüpfung von Spurengasmessungen ( $\text{CO}_2$ ) mit Box-Modellsimulationen konnte Vilà-Guerau de Arellano (2004) zeigen, dass der Transport von Spurengasen aus der FT in die PGS lokal weitreichende Konsequenzen auf das Mischungsverhältnis in der PGS und auf Bodenmessungen haben kann. Eine weitere Methode zur Identifizierung von Transport- und Mischungsprozessen an Grenzflächen wird an der Tropopausenregion mit der Tracer-Tracer-Korrelationsmethode angewendet (u. a. Hoor, 2002). Das Ziel ist es, diese Methode auch auf die Grenzfläche der PGS anzuwenden, wie es bisher lediglich Neuman et al. (2012) über dem Westen der USA demonstriert hat.

## 1.7 Ziele dieser Arbeit

Ziel dieser Arbeit ist es, Einmischungsvorgänge, einerseits durch Ferntransport und andererseits durch lokale Einmischung aus der FT in die PGS, über einer Messregion zu bestimmen. Dazu ist eine Verknüpfung von Messgrößen (Spurengasen oder Aerosolen) aus Beobachtungen mit Transportmodellen genauso wichtig wie die Kenntnis der Eigenschaften der Messregion unter unterschiedlichen synoptischen Bedingungen. In Kapitel 2 und Kapitel 3 werden der Messort der Messkampagne, die Datengrundlage und ergänzende Hilfsmittel zur weiteren Analyse vorgestellt. In den weiteren Kapiteln werden die Ergebnisse zu folgenden Fragestellungen diskutiert:

Kapitel 4 Wie sieht die Grenzschicht aus Radiosondenmessungen während der Messkampagne PARADE aus?

Kapitel 5 Wie gut repräsentieren numerische Wettervorhersagemodelle die Entwicklung der PGSH über der Messregion?

Kapitel 6 Welchen Effekt hat Ferntransport auf die vertikale Spurengasverteilung am Messort?

Kapitel 7 Kann lokale Einmischung zwischen der PGS und der FT mit Spurengasen am Messort bestimmt werden?

Kapitel 8 beinhaltet schließlich die Zusammenfassung der Ergebnisse und im allgemeinen Kontext einige Überlegungen für zukünftige Untersuchungen. Zusätzliche Informationen zu verschiedenen Themengebieten in dieser Arbeit sind im Anhang enthalten.





# Kapitel 2

## Beschreibung der Instrumente und Hilfsmittel

In diesem Kapitel werden die Messsysteme vorgestellt, die verwendet werden, um den thermodynamischen und chemischen Zustand der Atmosphäre am Messort auf dem Kleinen Feldberg (im Folgenden KF) im Taunus zu untersuchen. Dazu gehören neben den bodennahen Messungen, Radiosonden, einem Ceilometer und flugzeuggetragenen Messungen auch die Lagrangeschen Transportmodelle und die notwendigen antreibenden Modelldaten.

### 2.1 Instrumente

#### 2.1.1 Taunus Observatorium

Auf der Bergkuppe des KFs befindet sich das von der Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main betriebene Taunus Observatorium (50°13.25 N, 8°26.56 E). Auf dem KF werden zudem kontinuierlich vom Deutschen Wetterdienst (DWD) und dem Hessischen Landesamt für Umwelt und Geologie (HLUG) Messungen zur Überwachung von Luftqualitätsrichtlinien und zur Assimilation der meteorologischen Variablen für Wettervorhersagemodelle durchgeführt. Die Messzeiten sind immer in UTC (koordinierte Weltzeit = lokale Zeit - 2 Stunden) angegeben. Das Taunus Observatorium wurde bereits für die Ausrichtung einer Vielzahl von Kampagnen genutzt, um die Zusammensetzung von Wolken, den Zusammenhang von Mineralstaub und Eiskeimkonzentration oder auch den Einfluss von Luftverschmutzung in diesem Gebiet zu untersuchen (u. a. Wobrock et al., 1994; Handisides, 2001; Klein et al., 2010; Crowley et al., 2010).

#### 2.1.2 CO<sub>2</sub>-Messungen

Die Mischungsverhältnisse (MV) von CO<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>O werden mittels differentieller breitbandiger Infrarot-Absorptionsmessungen mit dem Gasanalysator LICOR-6262 der Firma LICOR Biosciences GmbH bestimmt. Das Messprinzip basiert auf der Abschwächung eines eingehenden Lichtstrahls durch die Absorption von CO<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>O im Infrarotbereich. Je geringer das Signal am Detektor, desto mehr Licht wurde absorbiert, woraus auf ein höheres MV des Gases geschlossen werden kann. Physikalisch wird die Änderung der Strahlungsintensität durch die Absorption mit dem Lambert-Beer-Gesetz beschrieben:

$$I = I_0 \exp(-\sigma(\lambda) \cdot C \cdot l) \quad (2.1)$$

$I_0$  ist die eintreffende Strahlungsintensität [ $Wsr^{-1}$ ],  $\sigma(\lambda)$  ist der wellenlängenabhängige Absorptionsquerschnitt [ $cm^2 / \text{Moleküle}$ ],  $C$  ist der Anteil der Absorbermoleküle [ $\text{Moleküle } m^{-3}$ ] und  $l$  die Absorptionslänge des Lichtweges im Medium [m]. Die CO<sub>2</sub>-Moleküle werden bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 4,26 \mu m$

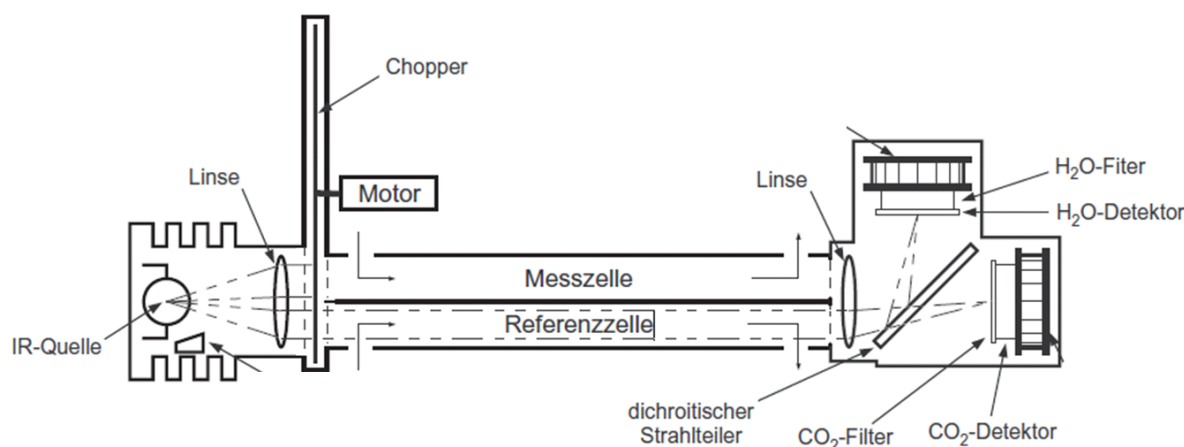


Abb. 2.1: Messprinzip des Licors LI-6262. Die Abbildung ist im Text erläutert.

bevorzugt zu Schwingungen angeregt. Absorbiert ein  $\text{CO}_2$ -Molekül Infrarotstrahlung dieser Wellenlänge, nimmt es einen Energiebetrag von  $\Delta E = h \cdot f = h \cdot c / \lambda$  auf und geht in ein höherliegendes Schwingungsniveau über. Der Aufbau des Messgeräts ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Der Gasanalysator wird im differentiellen Modus betrieben und hat dazu eine Mess- und eine Referenzzelle (Abb. 2.1). Die Messzellen werden von der gleichen IR-Lichtquelle durchleuchtet und dies wird realisiert, über die abwechselnde Abblendung beider Zellen mit einer Frequenz von 500 Hz über das Chopperrad. Die Strahlung wird über eine Linse auf beide Messzellen fokussiert und eine weitere Linse am Ende der Messzellen bündelt den geschwächten Lichtstrahl auf einen dichroitischen Strahlteiler. Dies ermöglicht die gleichzeitige Messung von  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  durch die Aufteilung des eingehenden Signals auf zwei Detektoren. Vor dem  $\text{CO}_2$ -Detektor befindet sich ein Filter mit einer Durchlasswellenlänge  $\lambda = 4.26 \mu\text{m}$  und einer Bandbreite von 150 nm, vor dem  $\text{H}_2\text{O}$ -Detektor einer mit einer Durchlasswellenlänge  $\lambda = 2.59 \mu\text{m}$  und einer Bandbreite von 50 nm. So ist es möglich, ausschließlich die Absorption durch  $\text{CO}_2$  bzw.  $\text{H}_2\text{O}$  zu messen, da durch die guten Eigenschaften der Filter jegliche Querempfindlichkeit zu anderen infrarotabsorbierenden Gasen unterdrückt wird. Für höhere Genauigkeiten wird ein differentielles Messverfahren zwischen den zwei identischen Messzellen verwendet. In der Referenzzellen wird ein Kalibriergas mit konstantem (bekanntem) Mischungsverhältnis ( $MV_R$ ) eingesetzt. Aus dem gemessenen Signal kann dann das MV von  $\text{CO}_2$  bzw.  $\text{H}_2\text{O}$  in der untersuchten Luft berechnet werden (Abb. 2.2):

$$MV = F\left((VG + V_r) \frac{P_0}{P}\right) \left(\frac{T + 273}{T_0 + 273}\right) \quad (2.2)$$

Dazu ist ein Polynom  $F(V)$  fünften Grades notwendig. Die weiteren Variablen sind ein Korrekturparameter  $G$ , ein theoretisches Messsignal  $V_R$  [V] berechnet aus dem bekannten MV in der Referenzzelle, der Zellendruck  $P$  [hPa], der Standardatmosphärendruck ( $P_0 = 1013.25 \text{ hPa}$ ), die Gastemperatur  $T$  [°C] und die gerätespezifische Kalibrationstemperatur  $T_0$  [°C]. Eine ausführliche Herleitung der Gleichung 2.2 ist in der Gerätebeschreibung zu finden (LI-6262, 1996).

Um Geräteinstabilitäten und nichtlineare Zusammenhänge zwischen dem Differenzsignal und dem MV zu erfassen, werden in regelmäßigen Abständen abwechselnd zwei Kalibriergase mit bekanntem MV durch die Messzelle geleitet und so wird das Messgerät auf zwei Punkte (Nullpunkt und Sensitivität) kalibriert. Außerdem ist bekannt, dass bei

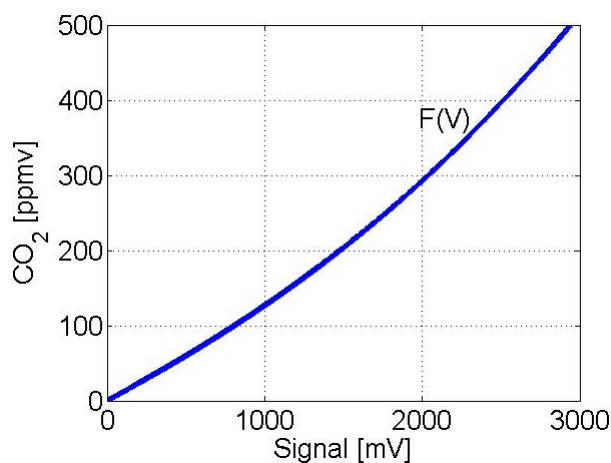


Abb. 2.2: Zusammenhang zwischen dem Messsignal,  $\text{CO}_2$ -Mischungsverhältnis und dem Polynom  $F(V)$ .

dieser Messmethode das Wasser die CO<sub>2</sub>-Messungen verfälschen kann. Als Ursache dafür können drei Haupteinflüsse benannt werden: (1) Direkte Absorption von H<sub>2</sub>O im untersuchten CO<sub>2</sub>-IR-Absorptionsbereich, (2) Verdünnungseffekt durch Partialdruckverschiebung und (3) Druckverbreiterung der Spektrallinien. Diese Einflüsse werden intern im Gerät korrigiert (LI-6262, 1996).

### 2.1.3 Radiosonden

Zur Ergänzung der bodennahen Beobachtungen während der Messkampagne PARADE wurden mehrmals täglich Radiosonden der Firma GRAW Radiosondes GmbH mit der Bezeichnung DFM-06 vom Plateau auf dem KF gestartet. An einem Wetterballon befestigt, ermöglicht eine Radiosonde (RAS), Vertikalprofile von verschiedenen meteorologischen Variablen zu gewinnen. Dazu sendet die RAS einen codierten Datensatz aus den Messdaten der Temperatur, der Feuchte und der Position (GPS, Globales Positionbestimmungssystem) und weitere Variablen zu der Bodenstation am KF. Die zeitliche Auflösung der RAS liegt bei 1 Hz. Die RAS kann je nach Ballonbefüllung und -typ eine Höhe von bis zu 30 km erreichen. Zum Schutz ist die RAS in einem Schaum-Polystrol-Gehäuse verpackt, und lediglich die Übertragungsantenne und die Messfühler sind unverhüllt. Die Steuerung von Dateninitialisierung, Verarbeitung und Übertragung der Daten erfolgt über einen Mikroprozessor und wird von einer Lithiumbatterie betrieben, die eine Lebenszeit von rund fünf bis sechs Stunden hat.

Die Temperatur wird durch einen Keramiksensoren bestimmt, dessen Widerstand bei zunehmender Temperatur steigt. Die Genauigkeit wird mit 0.2 °C angegeben und die Auflösung liegt bei 0.01 °C. Allerdings werden in der Ausgabe der Daten lediglich Auflösungen von einem Zehntelgrad mitgeschrieben. Jede RAS wird vor der Auslieferung auf vier Temperaturstützpunkte werksintern kalibriert und gegen eine fünfte Temperatur mit einer Genauigkeit von 0.15 °C kontrolliert (pers. Kommunikation, GRAW).

Zur Bestimmung der Luftfeuchtigkeit wird ein kapazitiver Kunststoffsensor verwendet, bei dem sich der Kunststoff mit zunehmender Feuchte ausdehnt. Die Auflösung beträgt hier 1 % und die Genauigkeit liegt bei 5 %.

Die Höhe wird mit weniger als 5 m genau bestimmt und die horizontale Position mit weniger als 20 m. Aus der Differenz der Position der fliegenden RAS zur Bodenstation ergibt sich die Bestimmung der Windgeschwindigkeit und Windrichtung. Über die GPS-Höhe wird der Druck nach dem WMO-Standard berechnet. Die Details zur Genauigkeit und Reaktionszeit der Sensoren sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst. Für weitere Informationen wird auf die Dokumentationen der Firma GRAW ([www.graw.de](http://www.graw.de)) verwiesen.

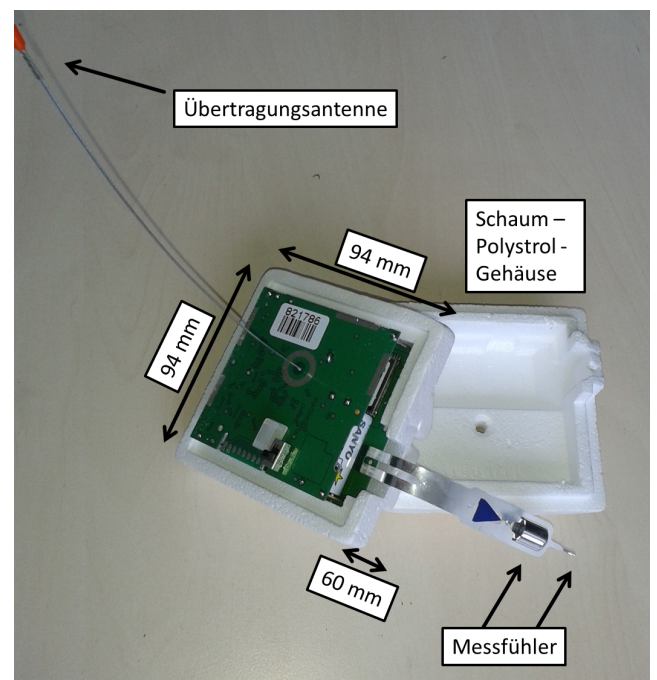


Abb. 2.3: Radiosonde DFM-06 der Firma GRAW.

Sensor	Genauigkeit	Auflösung
Temperatur	0.2 °C	0.01 °C
relative Feuchte	5 %	1 %
Windgeschwindigkeit	0.2 ms <sup>-1</sup>	-
horiz. Position	< 20 m	-
vert. Position	< 5 m	-

Tab. 2.1: Eigenschaften der Radiosonde DFM-06 der Firma GRAW.

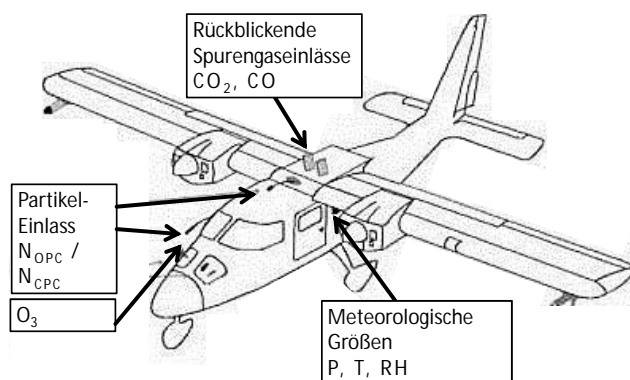
### 2.1.4 Ceilometer

Das Ceilometer CHM 15 k-x der Firma Jenoptik ([www.jenoptik.com](http://www.jenoptik.com)) nutzt einen Nd:YAG-Festkörperlaser primär zur Bestimmung der Wolkenbasis von 200 m bis in Höhen von 15 km. In Abwesenheit von Wolken kann das Gerät außerdem zur Detektierung von Aerosolschichten verwendet werden. Der Laser emittiert einen Lichtpuls mit einer Wiederholungsfrequenz von 5-7 kHz, einer Pulszeit von 1 ns und einer Wellenlänge von  $\lambda = 1064$  nm senkrecht in die Höhe mit einer vertikalen Auflösung von 15 m. Diese Wellenlänge ist durchlässig für Ozon und Wasserdampf und wird hauptsächlich an Aerosolen und Tröpfchen zurückgestreut. Über die Lichtgeschwindigkeit und die Zeit, die der Lichtpuls zurücklegt, lässt sich die Weglänge bestimmen. Mit verschiedenen Datenanalysemethoden können somit kontinuierlich und hochaufgelöst die wolkenfreie Grenzschichthöhe, sowie auch advehierte Staubwolken in höheren Schichten (zum Beispiel: Vulkanasche) bestimmt werden. Dazu sind eine Reihe von Korrekturen zu beachten, die nur mit Hilfe einer Kalibration möglich sind (u. a. Wiegner et al., 2014). Die genaue Funktionsweise des Messgerätes während der Messkampagne PARADE sowie nähere Informationen zur Datenfilterung und -korrektur sind in der Diplomarbeit von Wendling (2012) beschrieben. Weitere Anwendungsbeispiele sind u. a. in Münkler et al. (2007) aufgeführt.

### 2.1.5 Flugzeuggetragene Instrumente

Zur weiteren Messung von Spurengasen stand als Plattform das Kleinflugzeug „Partenavia P68 D-Gery“ von der Firma Enviscope GmbH ([www.enviscope.de](http://www.enviscope.de)) zur Verfügung. Das Flugzeug ist außer mit Standardinstrumenten zur Messung von Position, Höhe, Feuchte, Temperatur und Fluggeschwindigkeit mit weiteren Instrumenten vom Institut für Physik der Atmosphäre in Mainz zur Messung von  $\text{CO}_2$ , CO, Ozon und Partikelanzahlkonzentration ( $N_{CPC}$  und  $N_{OPC}$ ) ausgestattet.

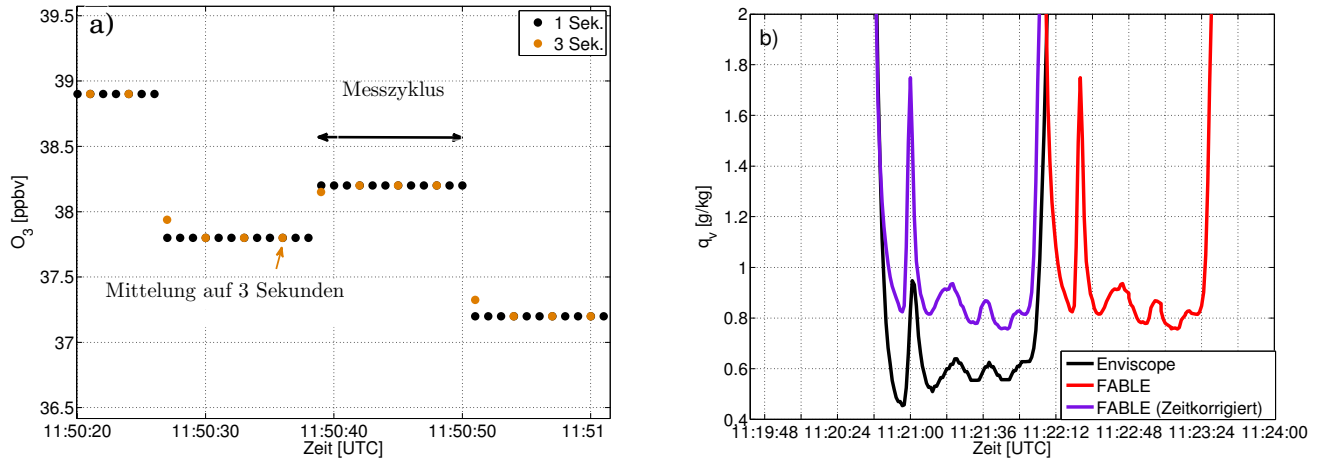
Eine Übersicht über die einzelnen Instrumente und deren Eigenschaften mit Verweisen auf andere Studien sind in Tabelle 2.3 zu finden. Details zum Messprinzip der einzelnen Instrumente sind im Anhang zusammengefasst. Die Eigenschaften der Spurengase wurden im Detail in der Einleitung in Kapitel 1.3 beschrieben.



**Abb. 2.4:** Schematische Skizze zur Demonstration der Position der Einlässe.

### Korrekturen und Limitierungen

Die Zeitauflösung der Rohdaten liegt bei allen Variablen bei 1 Hz, mit der Ausnahme der Partikelanzahlkonzentration  $N_{OPC}$  (0.5 Hz) des optischen Partikelzählers (OPC) und Ozon (ca. 0.1 Hz). Des Weiteren sind Teile der Ozonmessungen durch eine zeitliche Mittlung geglättet. Zur weiteren Analyse wurde der gesamte Datensatz auf eine einheitliche Zeit mit einer Auflösung von 3 s gelegt (beispielhaft für Ozon in Abbildung 2.5a gezeigt). Zuvor wurden die Daten ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  (FABLE) und CO) gemäß der In-situ Kalibrationen driftkorrigiert. Die Partikelanzahlkonzentration  $N_{OPC}$  beinhaltet Partikelgrößen von 0.25 bis  $31 \mu\text{m}$  und  $N_{CPC}$  bereits ab  $0.02 \mu\text{m}$ . Für beide Messgrößen gilt, dass der Aerosoleinlass nur Partikelgrößen von kleiner gleich  $1 \mu\text{m}$  zu 100 % vermessen kann. Größere Partikel können durch Kollisionen an den Wänden des Einlasses verloren gehen. Die Partikelanzahlkonzentration wurde auf Standardbedingungen normiert ( $p = 1013 \text{ hPa}$ ,  $T = 273.15 \text{ K}$ ). Die flugzeuggebundenen Messungen wie etwa Position, Höhe, Temperatur und Druck wurden von Enviscope überprüft. Für die Temperatur- und Feuchtesensoren wurden während dieser Kampagne neue Einbauorte genutzt, für die es noch keine Kor-



**Abb. 2.5:** Mittelung der sekundlichen Ozonmessungen (schwarz) auf 3 Sekunden (orange), b) Ausschnitt zur Demonstration der Zeitverschiebung von  $q_v$  zwischen Enviscope und dem Instrument FABLE vor und nach der Zeitkorrektur.

	Zeitliche Verschiebung [s]		
	CO <sub>2</sub>	CO	O <sub>3</sub>
Flug 20110831	10	-	-
Flug 20110902a	72	-	-
Flug 20110902b	72	-	-
Flug 20110906a	84	84	12
Flug 20110906b	84	84	12

**Tab. 2.2:** Übersicht über die Zeitverschiebung aller Spurengasmessungen zur Referenzzeit (Flugzeugmessungen) für alle Flüge.

rekturfaktoren gibt (zum Beispiel: zur Kompensation des Temperaturaufschlages durch die Umwandlung von kinetischer in Wärmeenergie). Abweichung von 4 K zur realen Temperatur und mehr als 10 % zur realen relativen Feuchte sind somit möglich (pers. Korrespondenz, Enviscope).

Eine zusätzliche Korrektur war durch eine Asynchronität zwischen den verschiedenen Datensätzen notwendig (u. a. wegen verschiedener Flüsse in den Leitungen, unterschiedlicher Leitungslängen, ungenauer Zeitsynchronisation). Abbildung 2.5b zeigt einen Ausschnitt der spez. Feuchte ( $q_v$ ) von Enviscope (schwarz), FABLE (rot) und eine korrigierte Zeitreihe (lila) von FABLE. Diese Zeitverschiebung wurde mit der objektiven Kreuzkorrelationentechnik und auch mit subjektiver visueller Betrachtung der Zeitreihen durchgeführt. Es werden dabei lediglich redundante Zeitreihen mit derselben Variable miteinander korreliert, um nicht zufällige Zusammenhänge ungewollt in diese statistische Untersuchung einfließen zu lassen (Schönwiese, 2006).

Tabelle 2.2 fasst die Ergebnisse zusammen:  $q_v$  (FABLE) –  $q_v$  (Enviscope),  $p$  (O3-42M) –  $p$  (Enviscope), CO (Qualitas) – CO<sub>2</sub> (FABLE).

Instrument	FABLE	QUALITAS	O3-42M	GRIMM SKY-OPC	UAV-CPC	Enviscope
Messgröße	CO <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O	CO	O <sub>3</sub>	<i>N<sub>OPC</sub></i>	<i>N<sub>CPC</sub></i>	T,P,RH, LAT,LON,Z
Messmethode	IR-Absorption	Spektral- analyse	UV-Absorption	Optischer- Partikel-zähler	Konden- sations- partikel- zähler	-
Fluss	2 SLM <sup>1</sup>	-	0.7 SLM	-	-	-
Auflösung [Hz]	1	1	0.1	0.5	1	1
Abs.Genauigkeit	0.55 ppmV / 5.67 ppmV	2 % <sup>2</sup>	1.3 ppbv <sup>3</sup>	10 %	10 %	T: ±4 K, RH: 10 %
Quellen	Gurk et al. (2008)	Kormann et al. (2005)	Köllner (2013)	Weinzierl et al. (2011)	Weigel et al. (2009)	persönliche Korresp. Enviscope

**Tab. 2.3:** Übersicht der flugzeuggetragenen Instrumente. Ausführliche Beschreibungen sind in den Quellen und im Anhang gegeben. Fußnoten [1]: Standard Liter pro Minute, [2]: bei CO = 100 ppbv, [3]: bei O<sub>3</sub> < 100 ppbv und nur für trockene Luft.

## 2.2 Numerische Wettervorhersagemodelle

### 2.2.1 Deutscher Wetterdienst: COSMO-DE und COMSO-EU

Das internationale Consortium for Small-scale MOdelling (COSMO), das mehrere nationale Wetterdienste vereint, entwickelt und erhält ein Modell für operationelle Anwendung und Forschungszwecke. Die numerischen Vorhersagemodelle COSMO-DE und COSMO-EU sind zwei nicht hydrostatische, kompressible Ausschnittmodelle des Deutschen Wetterdienstes. Beide Modelle basieren auf dem gleichen prognostischen Ansatz von Modellgleichungen zur Berechnung von Temperatur-, Feuchte-, Wind- und Druckabweichungen sowie weiteren Variablen.

Das COSMO-EU-Modell hat eine horizontale Auflösung von rund 7 km und 40 Vertikalschichten in einem hybriden Koordinatensystem. Das heißt, in der Stratosphäre sind die Modellflächen horizontal, während in der Troposphäre die Höhenflächen der Modelltopographie folgen, je tiefer, desto genauer. Im operationellen Betrieb liegt die erste Modellschicht bei 10 m über der Modelltopographie, und ca. die Hälfte aller Modellschichten befinden sich in den ersten 5 km über Grund (Tab. 2.4). Das COSMO-EU-Modell rechnet alle 6 Stunden (00, 06, 12 und 18 UTC) Vorhersagen, bis zu 78 Stunden, in einem Gebiet, das fast ganz Europa, inklusive des Schwarzen Meers, der Ostsee und des Mittelmeers umfasst (Schulz and Denhard, 2009). Die Speicherung der Ausgabefelder erfolgt stündlich.

Weitere Details zu den Zeitverfahren in der Datenassimilationsmethode und der physikalischen Parametrisierung nicht nur für die hochreichende Konvektion, sondern auch für die Wolkenmikrophysik sind in Schulz and Schättle (2009) zu finden.

Im Gegensatz zum COSMO-EU-Modell hat das COSMO-DE-Modell eine horizontale Auflösung von 2.8 km und 50 Vertikalschichten, wobei die Hälfte aller Schichten zwischen 1000 und 500 hPa verteilt sind. Das Modellgebiet umfasst im Wesentlichen Deutschland, Österreich und die Schweiz, sowie Teile der angrenzenden Nachbarländer (Baldauf et al., 2009b). Aufgrund seiner geringen Maschenweite ist hochreichende Konvektion ein skaliger Prozess und wird explizit simuliert, für subskalige flache Konvektion wird weiterhin das Tiedtke-Schema in einer abgewandelten Version verwendet. Weitere Details zur Modellparametrisierung des COSMO-DE-Modells sind in Baldauf et al. (2011) dokumentiert. Insgesamt werden achtmal pro Tag 21-stündige Vorhersagen für dieses Modellgebiet bereitgestellt. Die Antriebsdaten stammen dazu vom hauseigenen Globalmodell GME.

### 2.2.2 MeteoSchweiz: COSMO-7

Auch der Schweizer nationale Wetterdienst (MeteoSchweiz) simuliert seine Vorhersagen mit COSMO. Neben dem hochaufgelösten COSMO-2-Modell mit einem Modellgebiet, das nicht die Messregion dieser Arbeit abdeckt, wird das numerische Vorhersagemodell COSMO-7 betrieben. Der grundsätzliche physikalische Aufbau des Modells entspricht dem von COSMO-EU des DWD. Allerdings werden die Modellgleichungen auf ein abweichendes Modellgebiet mit einer geringeren horizontalen Auflösung (6.6 km) berechnet. COSMO-7 berechnet zwei und COSMO-2 acht 24-stündige Vorhersagen pro Tag. Ein weiterer Unterschied zu den COSMO-Versionen des DWD liegt in der vertikalen Auflösung von 60 Schichten, um größere topographische Unterschiede in den Alpen zu berücksichtigen (Tab. 2.4). Ferner stammen die Antriebsdaten nicht von einem hauseigenen Globalmodell, sondern vom Europäischen Zentrum für mittelfristige Wettervorhersage (engl. European Centre for Medium-Range Weather Forecast (ECMWF)) (Doms, 2011; Doms et al., 2011).

Modell- schicht k	COSMO-7 z(m)	Modell- schicht k	COSMO-EU z(m)	Modell- schicht k	COSMO-DE z(m)
34	5259	-	-	24	5123
35	4849	-	-	25	4720
36	4455	-	-	26	4337
37	4077	-	-	27	3972
38	3717	18	5300	28	3626
39	3375	19	4783	29	3298
40	3050	20	4295	30	2988
41	2743	21	3838	31	2695
42	2453	22	3408	32	2419
43	2181	23	3008	33	2161
44	1926	24	2635	34	1919
45	1690	25	2290	35	1693
46	1470	26	1973	36	1482
47	1268	27	1683	37	1288
48	1082	28	1420	38	1108
49	913	29	1183	39	943
50	761	30	970	40	793
51	625	31	783	41	657
52	505	32	619	42	534
53	399	33	477	43	425
54	309	34	358	44	330
55	232	35	259	45	246
56	167	36	179	46	176
57	112	37	119	47	117
58	68	38	69	48	70
59	34	39	35	49	35
60	10	40	10	50	10

Tab. 2.4: Vertikalschichten der verschiedenen COSMO-Versionen bis 5 km Höhe über Grund.

## 2.3 Lagrangesche Transportmodelle

### 2.3.1 Kinematische Trajektorien

In dieser Arbeit werden die rein kinematischen Trajektorienmodelle LAGRANTO (Wernli, 1997) und FLEXTRA (Stohl and Wotawa, 1995) genutzt. Beide Modelle wurden bereits in einer Vielzahl von Publikation beschrieben und in allen Höhengschichten der Atmosphäre verwendet (u. a. Stohl et al., 2001). Der wesentliche Unterschied liegt in der Bestimmung der Vertikalbewegung der Trajektorien. LAGRANTO nutzt den Vertikalwind aus den Analysedaten, während FLEXTRA den Vertikalwind über die Horizontaldivergenz unter Berücksichtigung des Bodendruckes neu berechnet. Rückwärtstrajektorien werden alle 10 Sekunden entlang jedes Flugweges basierend auf den Windfeldern des COSMO-7-Modells für bis zu 72 Stunden von der Eidgenössische Technische Hochschule Zürich (ETH) bereitgestellt. Des Weiteren wird in dieser Arbeit das Modell FLEXTRA mit ECMWF-Daten zur Berechnung von Rückwärtstrajektorien ausgehend vom KF betrieben.



### 2.3.2 Lagrangesche Partikel-Dispersionsmodelle

FLEXPART ist ein Lagrangesches Partikel-Dispersionsmodell (LPDM), das sowohl für den operationellen Katastrophenschutz als auch für Forschungsfragen entwickelt wurde (Stohl et al., 2005). Das Modell simuliert Ferntransport, Diffusion, Trocken- und Feuchtdeposition und radioaktiven Abfall von massenbehafteten Partikeln aus Punkt-, Linien- oder Volumen-Quellen. LPDM-Simulationen ersetzen Trajektorienberechnungen, indem nicht nur die Advektion durch die Windfelder, sondern auch Turbulenz und Konvektion berücksichtigt werden. Dazu wird im Modell die Parametrisierung von Turbulenz in der planetaren Grenzschicht und der freien Troposphäre durch die Langevin-Gleichung gelöst (Stohl and Thomson, 1999). Damit werden die kinematischen Windfelder, die auch für die Trajektorien genutzt werden, zusätzlich mit einem Drift- und Diffusionsterm modifiziert, um die Turbulenz durch die zusätzliche stochastische Fluktuation der Position aller Partikel zu berücksichtigen. FLEXPART kann zur Untersuchung der möglichen Ausbreitung von Schadstoffen von einer bestimmten Position vorwärts in der Zeit betrieben werden; oder es wird rückwärts betrieben, zur Bestimmung von Quellgebieten für einen bestimmten Rezeptor (Empfänger). Die Emissionssensitivität von möglichen Quellregionen ist dabei als Aufenthaltswahrscheinlichkeit zu interpretieren. Gebiete mit höheren Werten haben sehr wahrscheinlich mehr Einfluss auf die beobachtete Luftmasse am Messort als Gebiete mit geringeren Aufenthaltszeiten. Zusätzlich lässt sich mit der Faltung von Emissionskarten die Konzentration am Rezeptor reproduzieren.

FLEXPART ist ein Offline-Modell und benötigt meteorologische antreibende Felder (Analysen oder Vorhersagen) in einem Gridded Binary (GRIB)-Format von Wettervorhersagemodellen. Hierzu werden verschiedene FLEXPART-Versionen entwickelt, um für die Vielzahl von Global- und Regionalmodellen nutzbar zu sein. Die verschiedenen FLEXPART-Versionen werden nach den verwendeten meteorologischen Daten bezeichnet. Dazu zählen die Globalmodellldaten von ECMWF oder GFS (engl. Global Forecast System) oder die Regionalmodellldaten von WRF (engl. Weather Research and Forecasting Model) (Brioude et al., 2013) oder COSMO (Brunner, 2011). In allen Modellen wird dabei die Höhe der Grenzschicht über die Bulk-Richardson-Zahl mit dem kritischen Wert von  $RI_C = 0.25$  aus den meteorologischen Daten berechnet.

In dieser Arbeit wird erstmals das FLEXPART-COSMO-Modell mit Analysen des DWD betrieben. Eine Zusammenfassung der notwendigen Änderungen im Modell-Code sind im Anhang zu finden.



# Kapitel 3

## Messkampagne PARADE

### 3.1 Messkampagne PARADE

Die Kampagne PARADE (engl. PArticles and RAdicals: Diel observations of the impact of urban and biogenic Emissions) fand im Spätsommer 2011 auf dem Kleinen Feldberg (KF), 20 km nordwestlich von Frankfurt am Main in Deutschland statt (Abb. 3.1). Das Hauptziel dieser Kampagne bestand darin, die Einflüsse von Partikeln und Radikalen aus urbanen und biogenen Emissionen auf die Luftqualität in der Messregion im Zeitraum 15.08. bis 09.09.2011 zu charakterisieren. Der Messturm auf dem KF wurde mit diversen Gasphasenmessgeräten auf drei Ebenen ausgestattet. Die Einlässe der Messgeräte wurden zentral auf der obersten Ebene installiert, sodass die Messungen der Atmosphärenluft möglichst einheitlich durchgeführt werden konnten (Abb. 3.2). Neben dem Messturm wurden kontinuierliche Messungen mit dem mobilen Labor (MoLa) vom Max-Planck-Institut unterstützend durchgeführt (Drewnick et al., 2012). Details zu den einzelnen Instrumenten und ihre Eigenschaften sind in der Dissertation von Thieser (2013) zusammengefasst.

#### **Messort**

Der KF (825 m) ist die zweithöchste Erhebung im Taunusgebirge und umgeben vom Großen Feldberg (878 m, nordöstlich) und dem Altkönig (798 m, südöstlich). Das gesamte Gebirge erstreckt sich vom Rheingau nördlich des Rheins nach Nordwesten bis zum Großen Feldberg (Abb. 3.1). Das Rhein-Main-Gebiet im Südwesten der Messregion umfasst die Großstädte Frankfurt, Mainz und Wiesbaden und ist geprägt durch ein dichtes Transportnetz zu Land, Wasser und in der Luft. Der Nordwesten des Ballungsgebiets hingegen ist eher ländlich geprägt. Der KF und die umgebenden Gebirge sind aber häufig von den lokalen anthropogenen Quellen weitgehend entkoppelt und dementsprechend wird die Messstation am Taunus Observatorium als Hintergrundstation angesehen (Quass et al., 2009). Mit einer Höhe von 825 m über dem Meeresspiegel liegt das Taunus Observatorium in Abhängigkeit von der Wetterlage und Jahreszeit oftmals oberhalb der planetaren Grenzschicht (PGS) und an der Grenze zur Wolkenbasis. Zur Interpretation der Messungen auf dem KF ist es daher notwendig, den Zustand der atmosphärischen Grenzschicht unter Berücksichtigung der lokalen meteorologischen Bedingungen zu kennen. Außerdem ist die chemische Luftmassenzusammensetzung in der Messregion zu bestimmen. Dazu wurden zusätzlich zu den bodennahen Messungen auch Messungen mit einem Ceilometer, einer Vielzahl von Radiosonden und einem Kleinflugzeug während dieser Messkampagne durchgeführt.

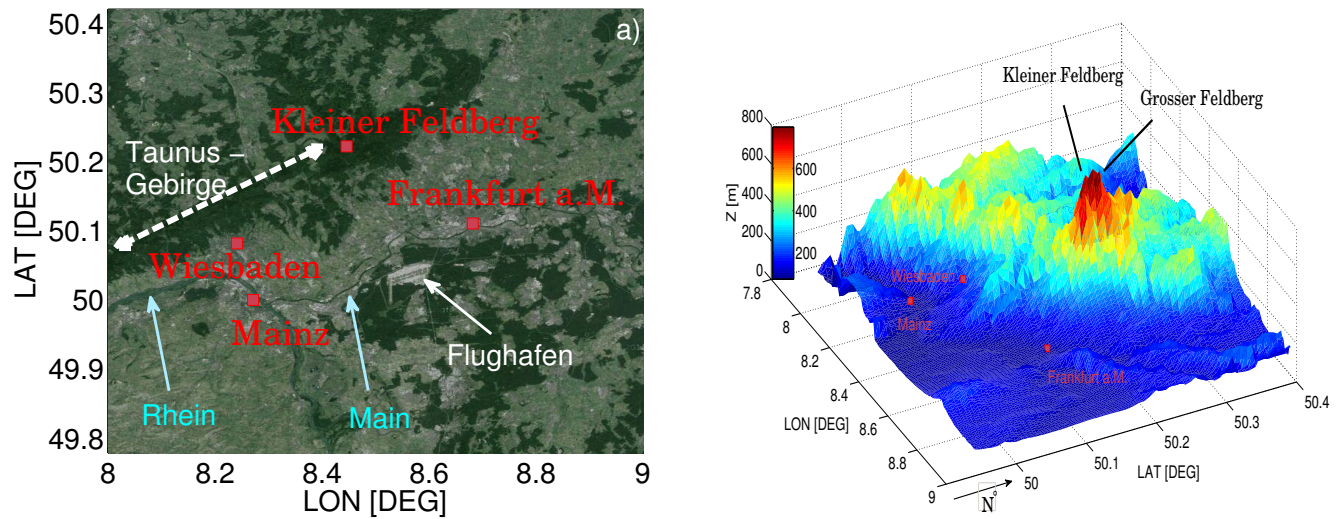


Abb. 3.1: Links: Blick von oben auf das Rhein-Main-Gebiet. Rechts: Topographie um den Kleinen Feldberg.



Abb. 3.2: Messturm auf dem KF und der Einlass zur  $CO_2$ -Messung.

## 3.2 Meteorologische Bedingungen während PARADE

Die synoptische Situation während der Messkampagne kann insgesamt in fünf verschiedene Perioden unterschiedlicher Länge unterteilt werden. Dazu werden typische, immer wiederkehrende Wettersituationen eingeteilt in sogenannte Großwetterlagen, welche in den mittleren Breiten im Jahresverlauf die Witterung in einem Gebiet mitbestimmen (Tab. 3.1). Die Einteilung der Großwetterlage ist angelehnt an die objektive Methode des Deutschen Wetterdiensts (Bissolli and Dittmann, 2001). Der Ursprung der Luftmassen wird mit Rückwärtstrajektorien, welche mit FLEXTRA berechnet wurden, subjektiv nach Hess and Brezowsky (1999) charakterisiert (Abb. 3.3). Die Rückwärtstrajektorien wurden dazu vom KF in 1500 m Höhe für jeden Kampagnentag um 12 UTC initialisiert und bis zu 48 Stunden basierend auf den Windfeldern von ECMWF mit einer horizontalen Auflösung von  $0.5^\circ$  zurückverfolgt. Zur Demonstration der lokalen Bedingungen sind Zeitreihen der meteorologischen Variablen (Temperatur, relative Feuchte, Globalstrahlung, Niederschlag, Windrichtung und Windgeschwindigkeit) während der Messkampagne PARADE in Abbildung 3.4 dargestellt.

P	D	HAR	Z 950	Z 500	F	LH	LB
1	15.-17.08.	SW	a / a	z / a	f / t	Britisches Meer	Häufiger Wechsel des Bewölkungsgrades
2	18.-19.08.	SO/SW	a	z	f	Atlantik	Kaltfront, Niederschlag
	20.-22.08.	NW/SW	a	a	t / f	Marine / Kontinental	Sehr warm, wechselhaft bewölkt zum Ende mit Niederschlag
	23.-26.08.	SW	z	a	f	Kontinental	Wechselhaft: Warm, häufig Nebel oder bewölkt, Kaltfront
3	27.-31.08.	SW/NW	a	z	t	Britisches Meer / Kontinental	Häufig dicht bewölkt mit Niederschlag
4	01.-04.09.	NW/SW	a	a	t / f	Stagnation / Kontinental	sehr warm, Kumulusbewölkung, Warmfront, kaum Niederschlag
5	05.-06.09.	SW	a / a	z / a	f / t	Atlantik	Feucht, Kaltfront, kühl, Niederschlag
	07.-09.09.	NW	a	z	t / f	Atlantik	Kaltfront, Nebel, Niederschlag, bedeckt

**Tab. 3.1:** Zusammenfassung der Wetterklassifizierung (Periode (P), Datum (D), Hauptanströmungsrichtung (HAR) auf 700 hPa, mittlere Zyklonalität (Z) auf 950 hPa und 500 hPa (a = antizyklonal, z = zyklonal), die mittlere Feuchtigkeit (F) nach Bissolli and Dittmann (2001), die Luftmassenherkunft (LH) nach Hess and Brezowsky (1999) und die vorherrschenden lokalen Bedingungen (LB) während der Messkampagne PARADE im Spätsommer 2011. Ein Wechsel der Bedingungen wird mit einem „/“ dargestellt. Zum Beispiel: feucht auf trocken (f / t).

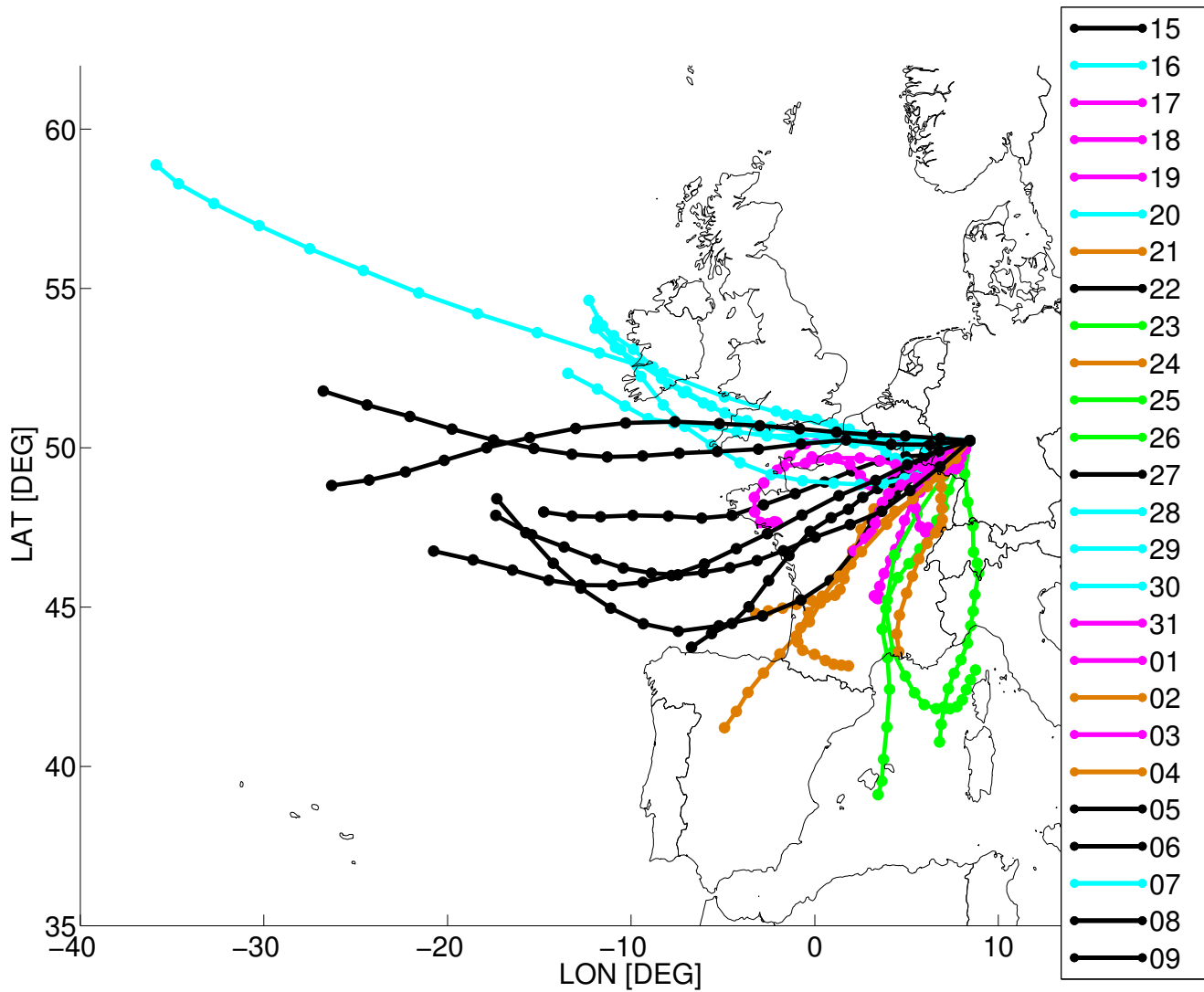


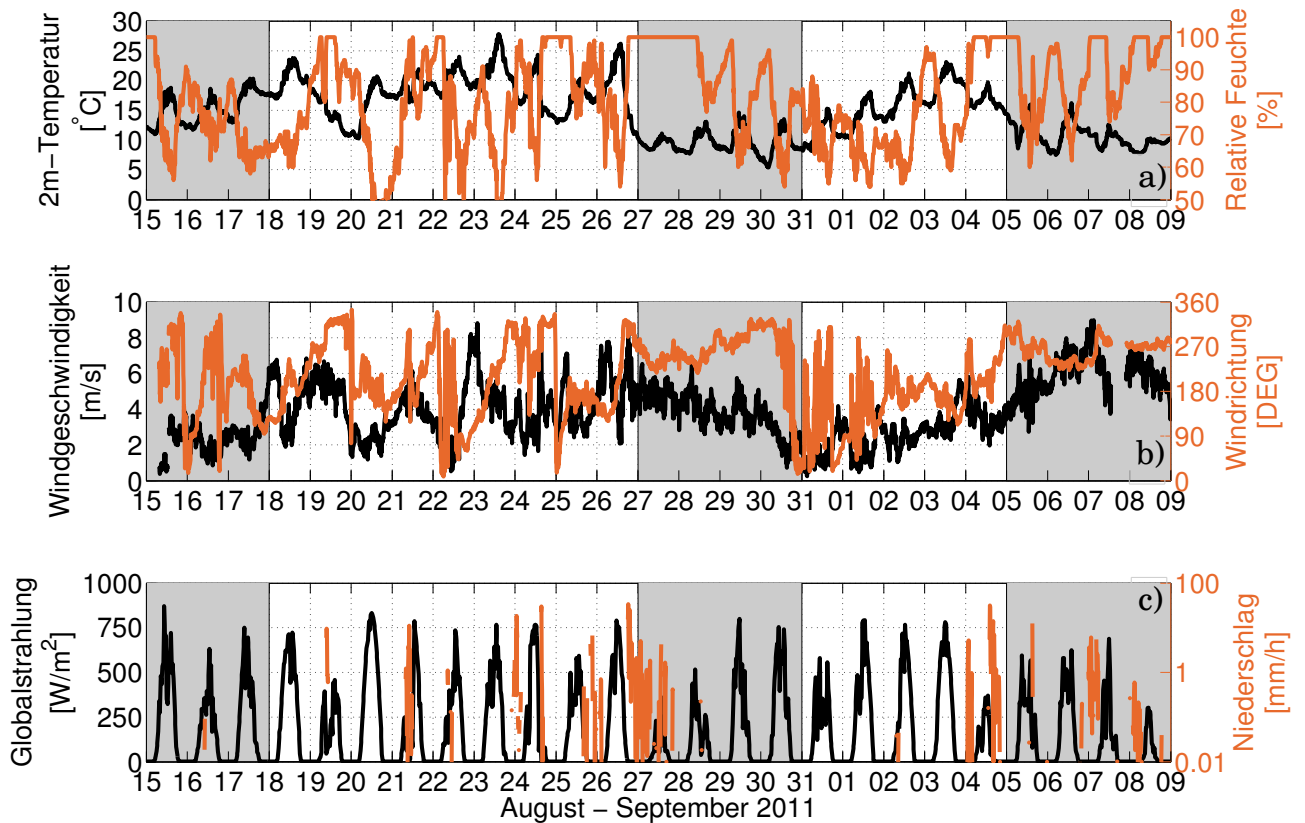
Abb. 3.3: Dargestellt sind Rückwärtstrajektorien, ausgehend vom KF in 1500m Höhe für jeden Kampagnentag um 12UTC, die mit FLEXTRA bis zu 48 Stunden zurückverfolgt wurden. Die Farben stellen die subjektiv eingeteilten Luftmassenherkunftskategorien England (cyan), lokal/stagnierend (magenta), kontinental/Südeuropa (orange), Mittelmeer/Südeuropa (grün), sowie Atlantik (schwarz) dar nach Hess and Brezowsky (1999).

Im Folgenden werden die verschiedenen Perioden mit den oben erwähnten Hilfsmitteln zusammengefasst und ergänzt durch Wetterkarten von ausgewählten Tagen, die die verschiedenen Perioden geprägt haben (Abb. 3.5 - 3.10).

### Periode 1

Die Messkampagne startet am 15.08.2011 mit dem Ende einer zonalisierten Höhenströmung, die deutliche zonale Charakteristika aufweist. Dies resultiert in einem nach Nordosten abziehenden Frontensystem mit einem Kerntief über Dänemark, das lokal über Süddeutschland ergiebige Regenmengen bringt (u. a. 53mm pro 24Std. in Stallwand in Bayern). Das Tief über Nordeuropa und ein Hoch über Südeuropa sorgen für eine westlich antizyklonale Strömung, die eine Zweiteilung in der Großwetterlage bis zum 18.08. hervorruft. Dieser Kontrast lässt sich auch in der Temperaturverteilung erkennen: Im Süden Deutschlands herrschen 32°C, während in Norddeutschland kühle 20°C gemessen werden. Anfänglich bewirkt die GWL einen Luftmassentransport aus Nordwesten, und führt durch die Hochdrucklage (reduzierte Windgeschwindigkeit) im Weiteren dazu, dass die Luftmassen lokal über dem Kontinent verharren.

Über dem KF äußert sich diese Periode durch geringe Windgeschwindigkeiten und klare Tagesgänge in der Temperatur (min. 11 bis max. 20°C) und relativen Feuchte (55 bis 100%). Anhand der Abschwächung der Globalstrahlung ist zu erkennen, dass die Messregion häufig von Wolken überquert wird. Niederschlag wird nur am 16.08. beobachtet.



**Abb. 3.4:** Zeitreihe (a) 2m-Temperatur und relative Feuchte (DWD), (b) Windgeschwindigkeit und Windrichtung in 10m Höhe (Turmmessung), (c) die Globalstrahlung (HLUG) und Niederschlag (MoLa). Die Schattierungen markieren die verschiedenen Hoch- und Tiefdruck-Perioden.

### Periode 2

Vom 18.08. an intensiviert sich ein Trog über dem europäischen Atlantik und bringt vor allem im Westen ergiebige Niederschläge und hohe Windgeschwindigkeiten mit sich. Nach dem Durchzug der Kaltfront am 19.08. über Mitteleuropa, dreht die Höhenströmung von W auf SW und bringt feuchtwarme Luftmassen nach Mitteleuropa. Ein neuer Trog über dem europäischen Atlantik sorgt vom 23.08. bis zum 26.08. für eine Intensivierung der Südlage, und mit der Strömung ziehende Tiefausläufer sorgen für Gewitter. Am 26.08. liegt der Trog zwischen den britischen Inseln bis an die spanische Nordküste und sorgt in ganz Europa mit Einsetzen der Westströmung für eine deutliche Luftmassenabkühlung.

Der Durchzug der Kaltfront am 19.08. auf dem KF geht mit einem Temperatursturz und hoher Feuchtigkeit einher. Nach der Kaltfront ist der 20.08. der sonnigste Tag während der gesamten Kampagne. Der weitere Verlauf der Periode ist geprägt durch häufigen morgendlichen Nebel (hohe relative Feuchte) und viele Wolken mit leichtem Niederschlag am Tag. Die Advektion von feuchtwarmen Luftmassen aus Süden führen zu einer deutlichen Temperaturzunahme. Unwetterartige Gewitter sind die Folge, und ein solches Gewitter passiert den KF am 24.08. gegen 15:12 UTC mit Spitzen in der Aufstiegs geschwindigkeit von bis zu  $30 \text{ ms}^{-1}$ . Der Durchzug der weiteren Kaltfront am 26.08. markiert einen deutlichen Luftmassenwechsel und Temperatursturz.

### Periode 3

Mit dem Durchziehen des Troges stellt sich vom 27.08. bis zum 30.08. eine nordwestliche Grundströmung ein, die primär Luftmassen vom britischen Meer nach Mitteleuropa transportiert. Gleichzeitig baut sich über Süd- bis Osteuropa eine Hochdruckbrücke auf.

Diese Periode ist auf dem KF geprägt durch den Luftmassenwechsel mit sehr kühlen, feuchten und windstarken Tagen. Häufig ist der KF in Nebel eingehüllt oder durch sehr tief liegende Schichtwolken bedeckt. Niederschlag fällt allerdings nur zu Beginn dieser Periode.

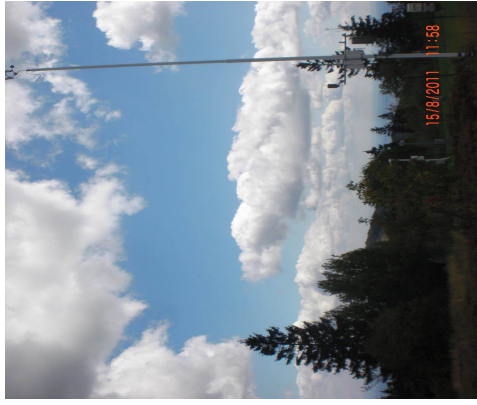
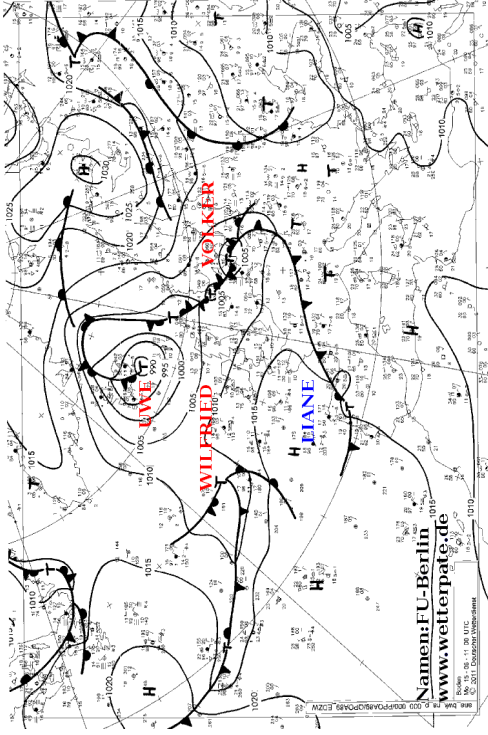
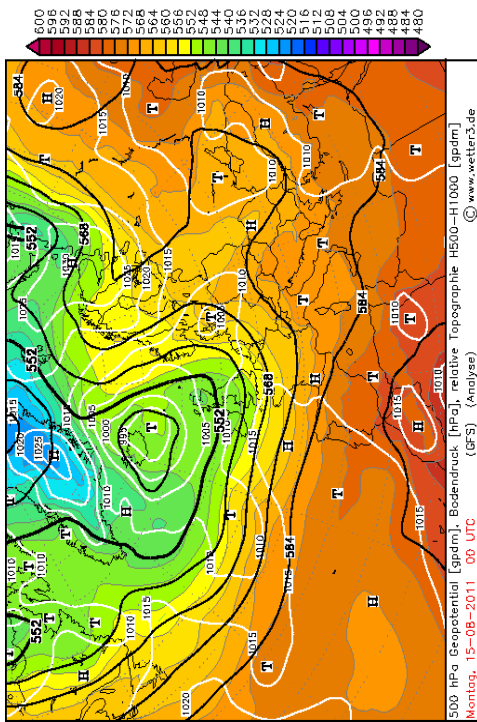


Abb. 3.5: Wettersituation am 15.08.2011 0 UTC. Links: Geopotentielle Höhe der 500 hPa Fläche, reduzierter Bodendruck auf Normal Null. Die Farbskala gibt die Schichtdicke in gpm an. Die Abbildung basiert auf Reanalysen des GFS-Modells (www.wetter3.de). Mitte: Bodendruckkarte des DWD, erweitert mit den Namen der Zyklonen (www.wetterpate.de). Rechts: Lokale Beobachtung vom Kleinen Feldberg gegen Mittag.

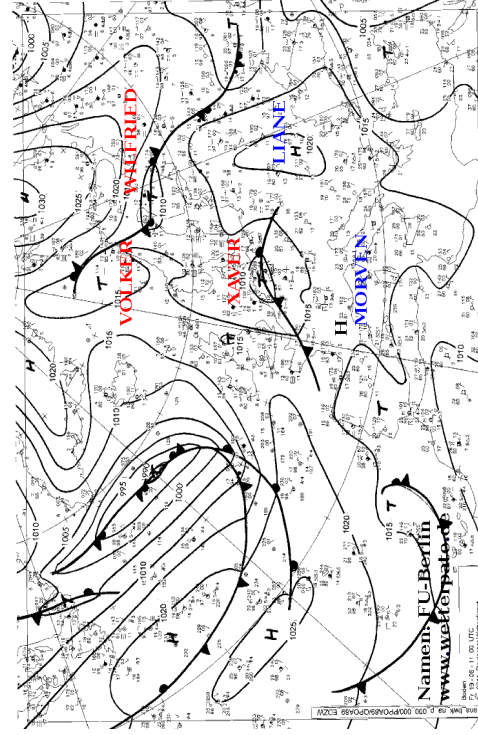
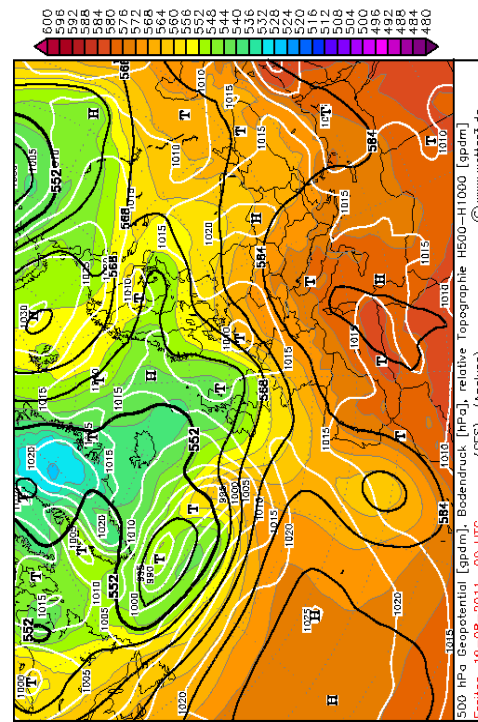


Abb. 3.6: Wie Abb. 3.5 für den 19.08.2011 0 UTC.



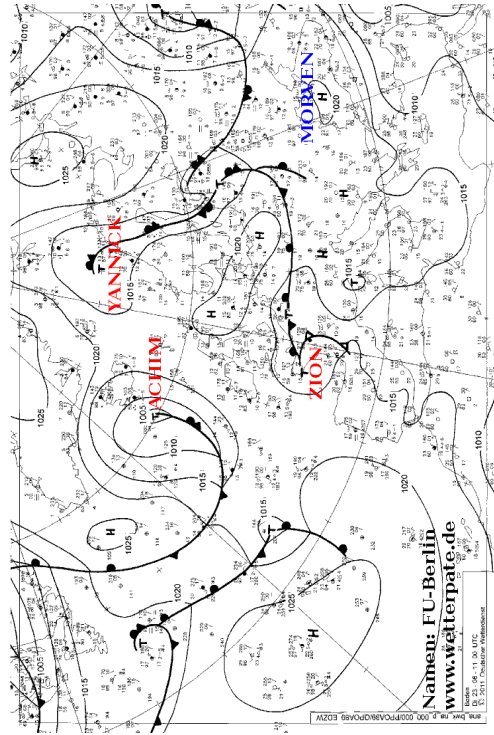
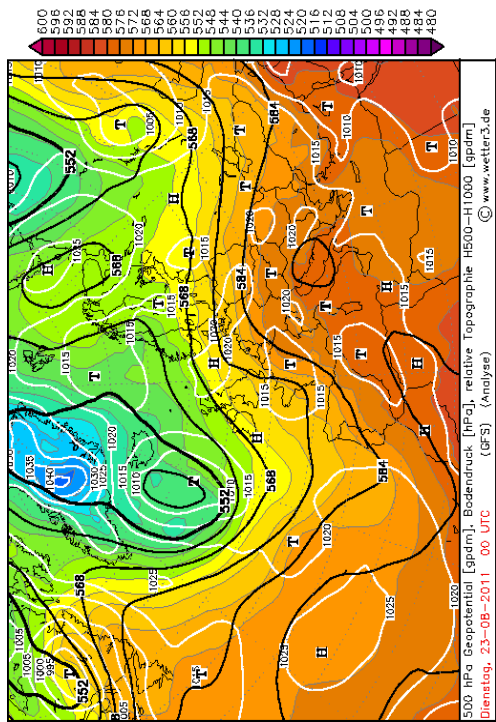


Abb. 3.7: Wie Abb. 3.5 für den 23.08.2011 0 UTC.

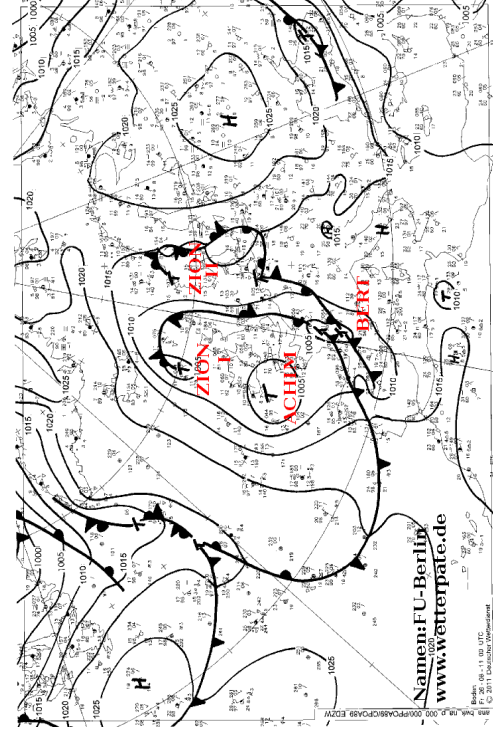
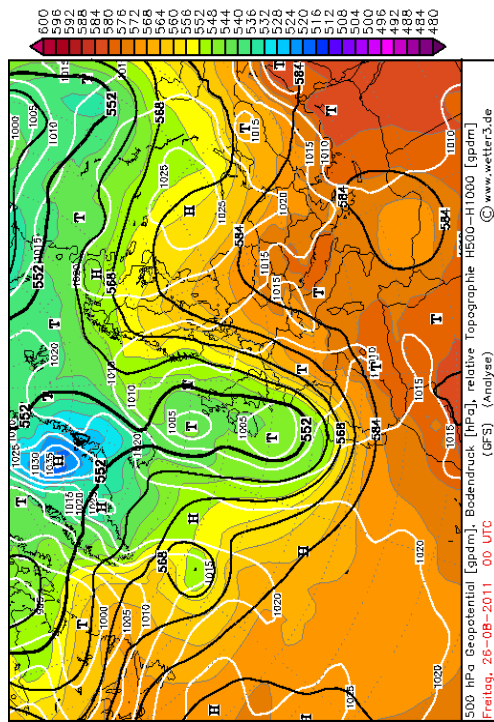


Abb. 3.8: Wie Abb. 3.5 für den 26.08.2011 0 UTC.

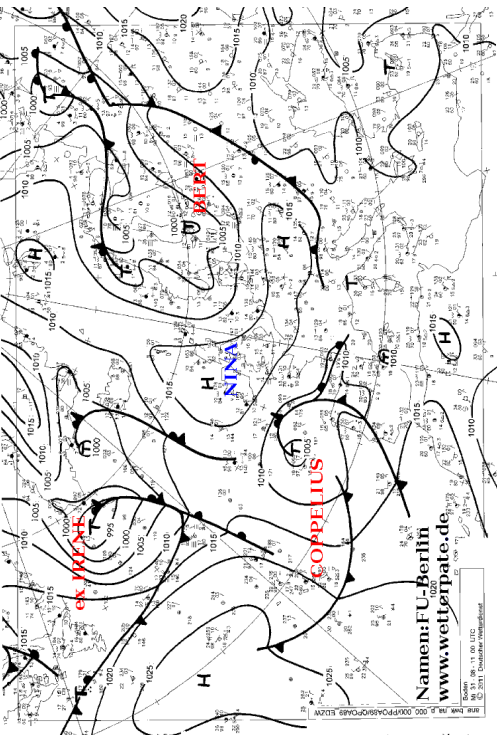
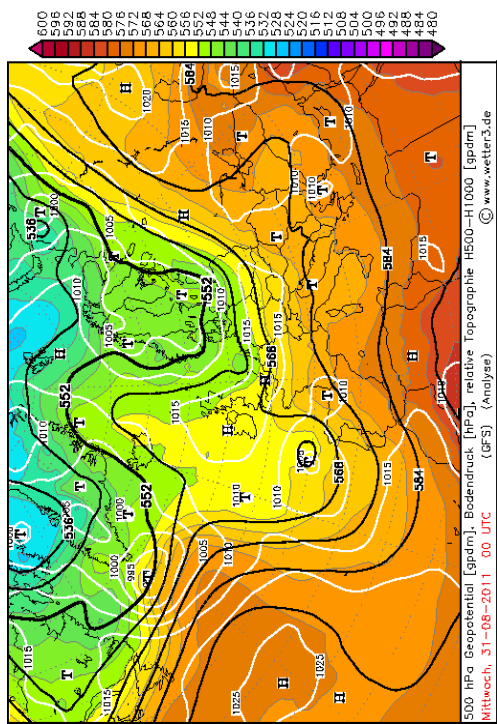


Abb. 3.9: Wie Abb. 3.5 für den 31.08.2011 0 UTC.

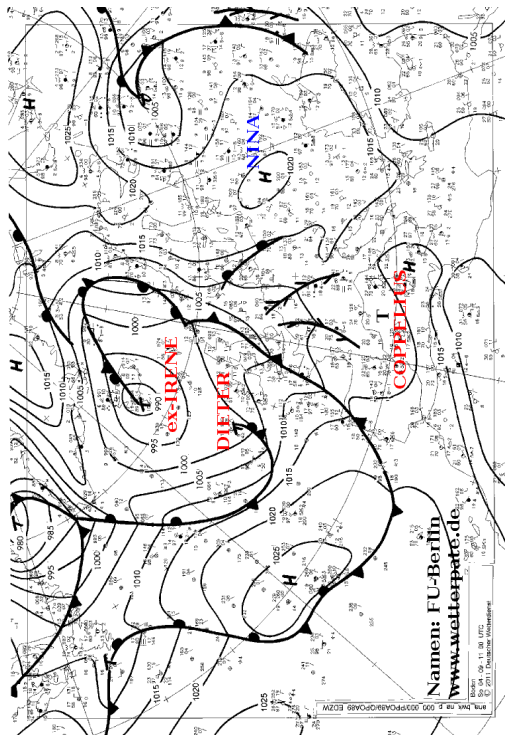
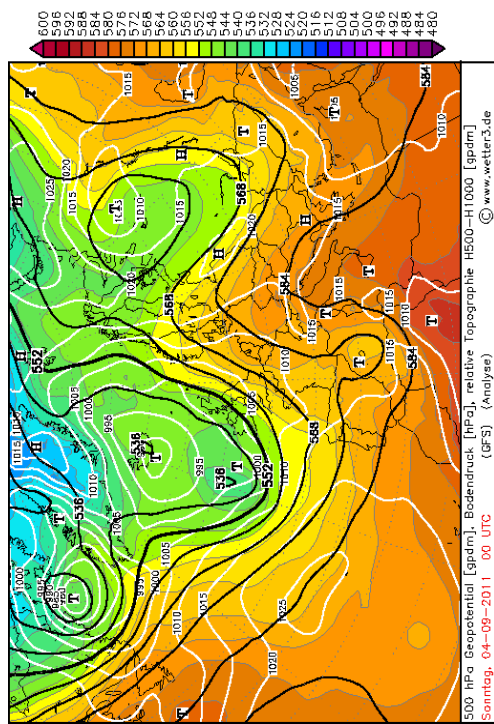


Abb. 3.10: Wie Abb. 3.5 für den 04.09.2011 0 UTC.

## Periode 4

Vom 31.08. bis zum 04.09. intensiviert sich die Hochdrucklage über Mitteleuropa durch ein Hochdruckkeil, welches westlich über das Nordmeer wandert. Der geringe Druckgradient über Europa äußert sich in geringen Windgeschwindigkeiten und führt zur Stagnation der Luftmassen über Europa (kurze Trajektorien). Dies ändert sich zum 02.09.; aus dem ehemaligen Trog (26.08.) ist ein Kaltlufttropfen über Spanien zum Erliegen gekommen, und bringt am 01.09. ergiebigen Niederschlag über Spanien ( $41\text{ l/m}^2$ ) und Südfrankreich ( $81\text{ l/m}^2$ ). Gleichzeitig überquert in der Nacht zum 02.09. eine schwache Warmfront, losgelöst von einem Randtief, von Südwesten nach Nordosten die Messregion und advehiert feuchtwarme Luftmassen aus Südeuropa an ihrer Rückseite. Ein neuer Trog über dem Ostatlantik verschiebt das Hochdruckkeil weiter westwärts und sorgt für eine zusätzliche Anströmung aus Südwest, wie auch in den Trajektorien bestätigt wird.

Zu Beginn dieser Periode prägt die Hochdruckwetterlage die Bedingungen auf dem KF mit mehrheitlich sonnigem Wetter, lockerer Kumulusbewölkung, hohen Temperaturen und wenig Niederschlag. Dies ändert sich am 02.09. mit dem Durchzug der Warmfront (leichter Niederschlag und Schichtbewölkung). Die Temperaturen bleiben durch die Südanströmung weiterhin hoch. Zum 04.09. ändern sich die lokalen Bedingungen: Bewölkung, Nebel oder häufiger Niederschlag prägen den Tag.

## Periode 5

Der Durchzug eines rasch ostwärts ziehenden Troges am 05.09. stellt über Mitteleuropa eine westliche Grundströmung ein. Bedingt durch das Passieren einer Serie von Tiefdruckgebieten über Nordeuropa und den Hochdruckeinfluss über Südeuropa entsteht ein hoher Nord-Süd-Druckunterschied. Diese Konstellation führt zu hohen Windgeschwindigkeiten über Mitteleuropa (vergleiche Trajektorienlänge).

Mit der Ausnahme vom 06.09. ist diese Periode auf dem KF geprägt durch sehr kühle, windige und regnerische Bedingungen mit dichter Bewölkung. Am 09.09. endet die Messkampagne.

Zusammengefasst steuert die Großwetterlage an insgesamt elf Tagen Luftmassen aus Nordwesten (Britisches Meer) oder Westen (Atlantik) nach Mitteleuropa. Zudem weisen fünf dieser elf Tage gealterte Luftmassen aus dem Polargebiet auf. Hinzu kommen zehn Tage mit Luftmassen eher kontinentalen oder lokalen Ursprungs und drei Tage mit Luftmassen ehemals maritim-nordafrikanischen Ursprungs. Insgesamt fünf Tröge und ein schweres Unwetter haben das Wettergeschehen in diesen vier Wochen auf dem KF beeinflusst (Tab. 3.1).

## 3.3 Durchführung von Messungen auf dem Kleinen Feldberg

### 3.3.1 CO<sub>2</sub>-Messungen

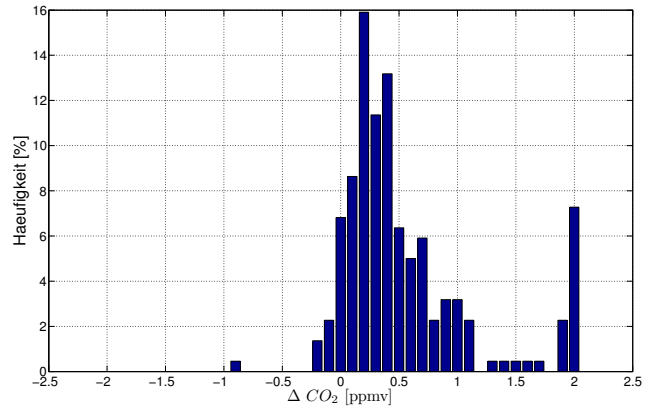
Der CO<sub>2</sub>-Gehalt in der Atmosphäre wurde mit dem LICOR 6262 (Kapitel 2) über die gesamte Messkampagne hinweg vermessen. Dazu wurde über eine 15 m lange 1/2-Zoll-Leitung über einen Bypass vom 15.08. bis 24.08. mit 10 l/min und ab dem 25.08. mit bis zu 4 l/min die Messluft angesaugt. Die Aufenthaltszeit der Luft in der Leitung betrug rund 1.5 bis zu 6 s je nach Flussstärke, während die Ansprechzeit des LICORs bei dieser Kampagne bei rund 10 s lag.

Während der Messungen wurden regelmäßige Zweipunktkalibrationen durchgeführt, um einen möglichen Gang des Gerätes (engl. Drift) zu korrigieren. Insgesamt wurden fünf verschiedene Kalibrationsflaschen zur Nullpunktkalibration verwendet und zwei für die Kalibration der Sensitivität. Die Kalibrationsgase wurden mit atmosphärischer Luft in 6-l-Auerflaschen gefüllt. Diese wurden gegen Laborstandards von NOAA (engl. National Oceanic and Atmospheric Administration) mit einer Gesamtunsicherheit von 0.1 ppmv angegeben. NOAA besitzt eine Reihe von Primärstandards, die von der WMO als offizielle CO<sub>2</sub>-Standards bestimmt wurden (WMO (World Meteorological Organization), 1995).

### Spezifikationen

Die Gesamtunsicherheit der  $\text{CO}_2$ -Messungen (bei trockener Luft) liegt für diese Messkampagne bei 0.27 ppmv und setzt sich zusammen aus der Präzision (0.02 ppmv), der Genauigkeit (0.15 ppmv) und die Genauigkeit des Laborstandards (0.1 ppmv).

Abbildung 3.11 zeigt alle Abweichungen der Referenzpunktkalibrationen ( $\Delta\text{CO}_2$ ) zu den Sollwerten in den Gasflaschen. Auffällig sind die Ausreißer mit  $\Delta\text{CO}_2 > 2$  ppmv. Diese Ausreißer sind alle ab dem 06.09. gegen 15 UTC aufgetreten und resultieren aus einer plötzlichen Änderung des Messsignals um 2 ppmv. Dieser Anstieg könnte im Zusammenhang mit Arbeiten in der Nähe des Messgerätes stehen, wobei einmalig Funksignale ausgesendet wurden und die elektromagnetische Strahlung das Messsystem des LICORs beeinflusst haben könnte. Für die weitere wissenschaftliche Analyse wurden die  $\text{CO}_2$ -Messungen in 10-Minutenmittel unterteilt. Zuvor wurden die Daten bereinigt (u. a. Logbucheinträge, Arbeiten an Einlässen, Datenkorrektur nach den Kalibrationen). Die Messungen von  $\text{H}_2\text{O}$  werden für die wissenschaftliche Analyse wegen fehlender regelmäßiger Kalibrationen ( $\text{H}_2\text{O}$ -Sensitivität) nicht weiter verwendet. Aufgrund von Feuchteabhängigkeiten kann das  $\text{CO}_2$ -Mischungsverhältnis während der Außenluftmessungen nicht besser als mit einer Gesamtunsicherheit von 1.5 ppmv angegeben werden.



**Abb. 3.11:** Häufigkeitsverteilung der Differenz aus den mittleren Referenz-Kalibrationen und den Sollwerten der Kalibrationen ( $\Delta\text{CO}_2 = \text{CO}_2(\text{Istwert}) - \text{CO}_2(\text{Sollwert})$ ).

### 3.3.2 Messungen mit Radiosonden

Um den Tagesgang und die Zeitreihe der Grenzschichthöhe (PGSH) an jedem Tag der Messkampagne zu erfassen, wurde täglich vor Sonnenaufgang die erste Radiosonde (RAS) gestartet, gefolgt von einer wechselnden Tagesfrequenz von fünf bis zehn weiteren Starts. Konsequenterweise wurde immer eine RAS um 12 UTC gestartet und die letzte nach Sonnenuntergang. Somit bilden insgesamt 174 RAS die Datengrundlage zur Untersuchung der PGSH und ihrer Eigenschaften während der gesamten Messkampagne vom 15.08. bis zum 08.09. zu verschiedenen synoptischen Situationen. Die gesammelten Rohdaten der RAS-Messungen beinhalten die Temperatur, den Druck, die Feuchte, die Windgeschwindigkeit, die Windrichtung, das Geopotential, die Distanz zwischen der RAS und der Bodenstation und weitere Variablen in Abhängigkeit der Zeit, in 1 Hz Auflösung.

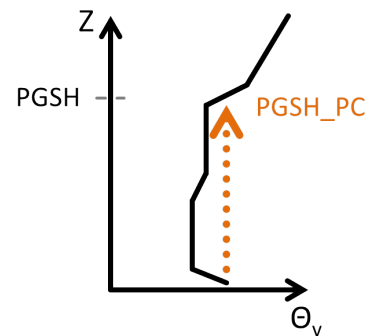
## 3.4 Grenzschichthöhenbestimmung mit Radiosonden

Die planetare Grenzschicht (PGS) ist definiert als die Luftmasse zwischen der Erdoberfläche und der planetaren Grenzschichthöhe (PGSH), und steht damit in direkter Wechselwirkung mit dem Erdboden. Nachfolgend werden die verschiedenen Ableitungen zur Berechnung der PGSH präsentiert und zur besseren Übersicht in Tab. 3.2 zusammengefasst:

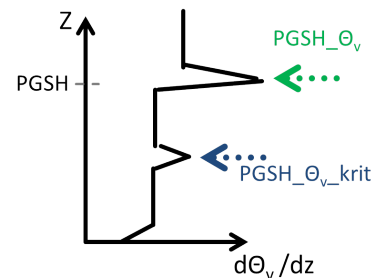
## Objektive Methoden zur Grenzschichthöhenbestimmung basierend auf Temperaturmessungen:

- a) Eine klassische Methode zur Bestimmung der PGSH ist die sogenannte Paket-Methode (PC, engl. parcel-method) (Holzworth, 1964). Sie beruht auf der Annahme, dass ein Luftpaket, aufgeheizt durch die solare Einstrahlung am Boden, so lange adiabatisch aufsteigt, bis es im Gleichgewicht mit der umgebenden Luftmasse steht. Die Höhe des Schnittpunktes von der Bodentemperatur ( $\theta_v(k_0)$ ) mit dem  $\theta_v$ -Profil entspricht demnach der PGSH ( $PGSH_{PC}$ ).

Die Methode funktioniert nur dann, wenn die Temperatur am Boden höher ist als in den darüberliegenden Schichten und somit ein sogenannter superadiabatischer Temperaturgradient vorhanden ist. Limitiert ist demnach die Paket-Methode unter stabilen Bedingungen, wenn ein positiver Temperaturgradient in Bodennähe zu beobachten ist, und bei schwach ausgeprägten Inversionen. In der Literatur werden verschiedene Erweiterungen der Paket-Methode beschrieben. Beispielfhaft wird bei der erweiterten Paket-Methode (engl. advanced-parcel-method) der superadiabatische Temperaturgradient in Bodennähe durch zusätzliche Messgrößen künstlich erhöht (u. a. Betts, 1992). Aber diese Verfeinerungen erfordern zusätzliche Messungen weiterer Größen (z. B. sensibler Wärmefluss), die während PARADE nicht durchgeführt wurden.



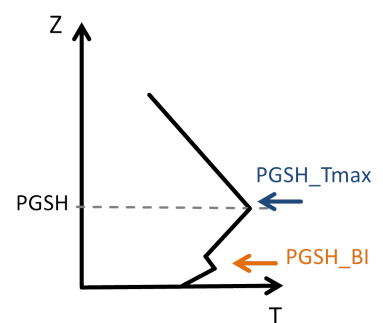
- b) Eine weitere Methode zur Bestimmung der PGSH basiert auf der Betrachtung des Gradienten der virtuellen potentiellen Temperatur (u. a. Stull, 1988; Oke, 1988). Eine positive Zunahme des Gradienten ist gleichbedeutend mit der Zunahme der Stabilität und markiert demnach die PGSH. Die Höhe des Maximums des vertikalen Gradienten der  $\theta_v$  wird als PGSH ( $PGSH_{\theta_v}$ ) angenommen.



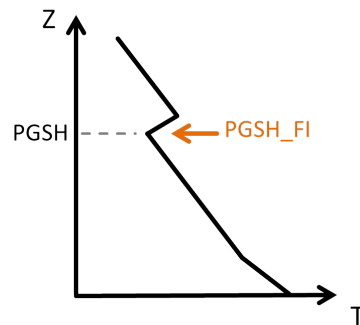
- c) Eine Verfeinerung der oben genannten Methode ist die Suche nach einem Schwellenwert anstelle des Maximums. Verschiedene Schwellenwerte werden dazu in der Literatur vorgeschlagen und variieren von 3 bis 8.3 K/m (André and Mahrt, 1982; Zeng et al., 2004). In dieser Arbeit wird der Schwellenwert auf 2 K/m festgelegt, da bereits das Maximum den höchsten Schwellenwert berücksichtigt. Um mögliche Fehldetektionen zu vermeiden, wird der erste bodennahe Wert nicht verwendet, da dieser extreme Ausprägungen erreichen kann.

## Bestimmung der Grenzschichthöhe mit Temperaturprofilen:

- d) Die Höhe der Oberkante einer bodennahen Temperaturinversion wird als PGSH ( $PGSH_{BI}$ ) angenommen (Bradley and Keimig, 1993). Dazu wird überprüft, ab welcher Höhe die Temperatur nicht mehr zunimmt.
- e) Eine Erweiterung der vorangegangenen Methode beruht auf der Suche nach der maximalen Temperatur im Vertikalprofil und zwar ohne Bodenkontakt (Coulter, 1990). Liegt diese maximale Temperatur mindestens 40 m oberhalb des Bodens, wird eine PGSH ( $PGSH_{Tmax}$ ) angenommen. Der Vorteil dieser Methode ist, dass kleinere Fluktuationen im Temperaturprofil vernachlässigt werden können.

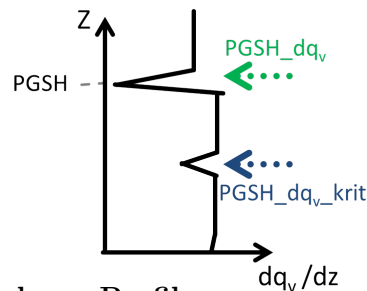


- f) Die Unterkante einer erhöhten freien Inversion (FI, engl. elevated inversion) markiert die PGSH, wenn die Temperatur, abweichend vom trockenadiabatischen Temperaturgradienten, mit der Höhe zunimmt oder konstant bleibt (Baxter, 1991). Dabei sollte die Temperaturzunahme mindestens eine Mächtigkeit von 100 m besitzen. Die Basis dieser Inversion wird als PGSH ( $PGSH_{FI}$ ) bestimmt.



#### Bestimmung der Grenzschichthöhe mit Feuchteprofilen:

- g) Äquivalent zu b) wird nun das Minimum des Vertikalgradienten der spezifischen Feuchte als PGSH ( $PGSH_{q_v}$ ) angenommen, das den Übergang zwischen der feuchten PGS und der im allgemeinen trockenen FT markiert.
- h) Ähnlich zu c) kann auch unterhalb dieses minimalen Feuchtegradienten bereits die PGSH liegen. Als Schwellenwert für den Vertikalgradienten der spezifischen Feuchte wird  $-0.1 \text{ kg/kg}$  angesetzt (Baumann-Stanzer and Groehn, 2004) und diese Höhe markiert die PGSH ( $PGSH_{dq_v\_krit}$ ).

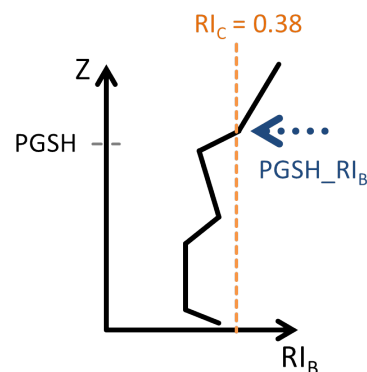


#### Bestimmung der Grenzschichthöhe aus der Kombination verschiedener Profile:

- i) Das diagnostische Richardson-Zahl-Schema (engl. bulk Richardson number ( $RI_B$ )) wird verwendet, um die PGSH ( $PGSH_{RI_B}$ ) zu bestimmen. Definiert ist die  $RI_B$  nach Vogelesang and Holtslag (1996) über:

$$RI_B(k) = \frac{g}{\langle \theta_v \rangle} \cdot \frac{(\theta_v(k) - \theta_{v,s}) \cdot (z(k) - z_s)}{[u(k) - u_s]^2 + [v(k) - v_s]^2 + b \cdot u_*^2} \quad (3.1)$$

wobei der Index  $s$  bezeichnet die Werte der Variablen in Bodennähe,  $g = 9.81 \text{ ms}^{-2}$  die Erdbeschleunigung,  $\langle \theta_v \rangle$  die mittlere virtuelle potentielle Temperatur über der Schichtdicke  $z$ ,  $\theta_v$  die virtuelle potentielle Temperatur und  $u$  und  $v$  als die Windkomponenten. Die Konstante  $b$  und die Schubspannungsgeschwindigkeit  $u_*$  werden für die weitere Berechnung mit den RAS nicht verwendet, da diese Größen wegen fehlender Messungen nicht bestimmt werden konnten. Im Gegensatz zu den bisherigen Methoden berücksichtigt die  $RI_B$ -Methode sowohl die thermische als auch die mechanische Produktion von Turbulenz und damit nicht nur die statische Stabilität, sondern auch die durch Windscherung hervorgerufene Turbulenz. Entsprechend gibt diese Methode ein Kriterium zur Bestimmung der Höhe an, ab der die turbulente PGS, markiert durch einen Schwellenwert, in die dynamisch stabile FT übergeht (Stull, 1988). In dieser Form kann die  $RI_B$ -Methode unter verschiedenen atmosphärischen Bedingungen (stabil, turbulent und neutral) verwendet werden, und das sowohl mit Messdaten als auch mit Modellanalysen.



In der Literatur werden verschiedene Modifikationen der  $RI_B$ -Methode präsentiert, wobei der wesentliche Unterschied im Ansatz liegt. Bei einer Methode werden die Gradienten der Differenzquotienten schichtweise aus den Messdaten berechnet, bei den anderen hingegen wird der Gradient vom Boden ausgehend über die komplette Höhe der Grenzschicht berechnet (Troen and Mahrt, 1986; Vogelesang and Holtslag, 1996; Mahrt et al., 1998; Hanna et al., 2000; Vickers and Mahrt, 2004; Baklanov et al., 2006). Erreicht die  $RI_B$ -Methode in einem Niveau einen zuvor definierten kritischen Schwellenwert, entspricht diese Höhe der PGSH. Dazu wird ausgehend von der Bodenschicht, sukzessive für jede verfügbare Vertikalschicht nach einem Schwellenwert gesucht. Wird dieser Schwellenwert überschritten, wird zwischen dieser Höhe ( $k$ ) und der vorherigen Höhe ( $k-1$ ) auf den Schwellenwert  $RI_C$  linear interpoliert. Im Gegensatz dazu ist die schichtweise Berechnung der  $RI_B$  mit Messdaten deutlich sensitiver auf häufig wechselnden Temperatur-, Feuchte- und Windgradienten wegen der höheren

Anzahl an Vertikalschichten (Sorensen et al., 1996) und kann schnell zu einer Fehldetektion der PGSH führen. Allerdings wird der häufig verwendete kritische Schwellenwert von  $RI_C = 0.25$ , aus experimentellen Tankstudien, für gültig befunden (Stull, 1988). Zilitinkevich and Baklanov (2002); Zhang et al. (2014) fassen verschiedene Schwellenwerte zusammen, wobei sich zeigt, dass  $RI_C$  zwischen 0.2 und 0.5 liegen sollte. Da dieser auch in den COSMO-Versionen des DWD so genutzt wird (Fay, 1998), wird in der vorliegenden Arbeit ein Schwellenwert von  $RI_C = 0.38$  verwendet und gegen andere Schwellenwerte getestet. Zu beachten ist, dass eine statisch stabile Schichtung noch dynamisch instabil sein kann und es keinen wohldefinierten Schwellenwert in der Atmosphäre gibt (Galperin et al., 2007).

Symbol	Erklärung	Limitierung	Quelle
$PGSH_{RI_B}$	Übergang turbulente in laminare Schichtung	Verschiedene Schwellenwerte in der Literatur	Seibert et al. (2000) Vogelezang and Holtlag (1996)
$PGSH_{PC}$	Höhe aus der Paket-Methode	Nur für neutrale oder labile Schichtungen geeignet	Holzworth (1964)
$PGSH_{\theta_v}$	Höhe des Maximums des Temperaturgradienten	mehrere Inversionsschichten	Oke (1988)
$PGSH_{\theta_v\_krit}$	Höhe wenn der Temperaturgradient größer als 2 K/km wird	Verschiedene Schwellenwerte	André and Mahrt (1982)
$PGSH_{FI}$	Höhe der Basis einer Temperaturinversion	mehrere Inversionsschichten	Baxter (1991)
$PGSH_{q_v}$	Höhe des Minimums des Feuchtgradienten	mehrere Inversionsschichten	Seidel et al. (2010)
$PGSH_{q_v\_krit}$	Höhe wenn der Feuchtgradient kleiner als -0.1 g/kg wird	Verschiedene Schwellenwerte	Baumann-Stanzer and Groehn (2004)
$PGSH_{Tmax}$	Maximale Temperatur oberhalb vom Grund	Auf bodennähe limitiert	Coulter (1990)
$PGSH_{BI}$	Höhe einer bodennahen Temperaturinversion	nicht stetiger Temperaturanstieg	Bradley and Keimig (1993)

Tab. 3.2: Zusammenfassung der Grenzschichthöhenkriterien





# Kapitel 4

## Zeitreihe und statistische Analyse der planetaren Grenzschichthöhe während der Messkampagne PARADE

Zur Interpretation der Spurengasmessungen auf dem Kleinen Feldberg (KF) während der Messkampagne PARADE ist es unabdingbar, auch die Höhe der Grenzschicht zu kennen. Die vertikale Mächtigkeit dieser Luftmasse wird dabei durch die planetare Grenzschichthöhe (PGSH) begrenzt. Die Bestimmung der PGSH hängt von der verwendeten Methode, den atmosphärischen Bedingungen und den daraus gemessenen meteorologischen Variablen ab (Kapitel 3). Je häufiger die Übereinstimmung dieser verschiedenen Methoden, umso wahrscheinlicher ist die PGSH gefunden. Diesbezüglich sind folgende Fragen zu klären:

- Welche Methode ist am geeignetsten, um die PGSH zu bestimmen? Lassen sich Qualitätsunterschiede zwischen den verschiedenen Methoden ausmachen?
- Kann anhand der Ergebnisse ein Tageszyklus der PGSH, ähnlich dem über homogenem Gelände, bestimmt werden? Welche Rolle spielen dabei die lokalen Gegebenheiten und die synoptischen Bedingungen?
- Welchen Einfluss hat die Grenzschichtentwicklung auf die Spurengaszusammensetzung am KF?

### 4.1 Datenaufbereitung

#### Die kritische bodennahe Temperatur aus Radiosonden

Die meisten Verfahren zur Grenzschichthöhenbestimmung (u. a. mit der Paket- oder der Bulk-Richardson-Zahl-Methode) hängen von der Kenntnis des Temperaturgradienten vom Boden bis zur freischwebenden Radiosonde (RAS) ab. Dieser Wert ist auch maßgeblich zur Stabilitätsbestimmung in der Vertikalen notwendig (Abb. 4.1).

In der vorliegenden Arbeit wurden die RAS manuell gestartet, sodass die bodennahen Messwerte vor dem Start bereits aufgezeichnet wurden. Ausgehend von dem ersten Messwert der frei schwebenden RAS ( $k=0$ ) wurden die vorherigen 10 Sekunden und folgenden 5 Sekunden gemittelt. Dies ist beispielhaft für die Temperatur gemäß Gleichung [4.1] gezeigt und in Abbildung 4.2a dargestellt.

$$T_{2m_{RAS}} = \frac{1}{n} \sum_{k=-10}^5 T(k) \quad (4.1)$$

Die so ermittelte bodennahe Temperatur ( $T2m_{RAS}$ ) wird mit den zeitgleichen 2m-Temperaturmessungen (nur verfügbar als Mittelwert über 10 Minuten) der DWD-Wetterhütte auf dem KF verglichen. Aus diesen Daten resultiert eine Korrelation von  $r = 0.99$  mit einer systematischen Abweichung von 0.3 K (Abb. 4.2b). Die geringen Abweichungen in dieser Korrelation lassen sich mit den verschiedenen Startpositionen und der Variabilität der Bodentemperatur im heterogenen Gelände erklären. Größere Differenzen zwischen diesen beiden Temperaturmessungen sind wahrscheinlich äußeren Einflüssen (u. a. direkte Sonneneinstrahlung) auf die Messensoren geschuldet. In diesem Zusammenhang werden positive Temperaturabweichungen zwischen  $T2m_{RAS} - T2m_{DWD} \geq 2 K$  als mögliche Messfehler interpretiert und für die weitere Auswertung nicht berücksichtigt.

Wie gesehen, kann die Temperaturmessung mit RAS in Bodennähe fehlerhaft sein oder ganz fehlen. In einigen Studien wird empfohlen, zum Beginn des Vertikalprofils der potentiellen Temperatur eine sogenannte Temperaturerhöhung  $\delta\theta_v$  hinzuzudieren, unter der Voraussetzung, dass die atmosphärische Schichtung labil ist (u. a. Troen and Mahrt, 1986; Vogelesang and Holtslag, 1996):

$$\delta\theta_v = \frac{C_1(\overline{\omega'\theta'_v})}{\sqrt{u_*^3 + C_2\omega_*^3}} \quad (4.2)$$

Diese Temperaturerhöhung basiert im Wesentlichen auf direkten Messungen des sensiblen Wärmeflusses ( $\overline{\omega'\theta'_v}$ ), der Schubspannungsgeschwindigkeit  $u_*$ , der konvektiven Skalierungsgeschwindigkeit  $\omega_*$  (Venkatram, 1978) und weiteren empirischen Konstanten  $C_1$  und  $C_2$ , deren Wahl subjektiv ist und die für einen zusätzlichen systematischen Fehler in der späteren PGSH-Bestimmung sorgen können (Seibert et al., 2000). Alternativ schlagen Beyrich and Leps (2012) vor, die 2m-Temperatur aus einer ventilierten Wetterhütte zu nutzen, wobei auch hier ein zusätzlicher systematischer Fehler die PGSH-Bestimmung belasten kann, wenn die Messinstrumente nicht miteinander vermessen wurden. Wegen fehlender Messungen konnten beide Alternativen in dieser Arbeit nicht verwendet werden.

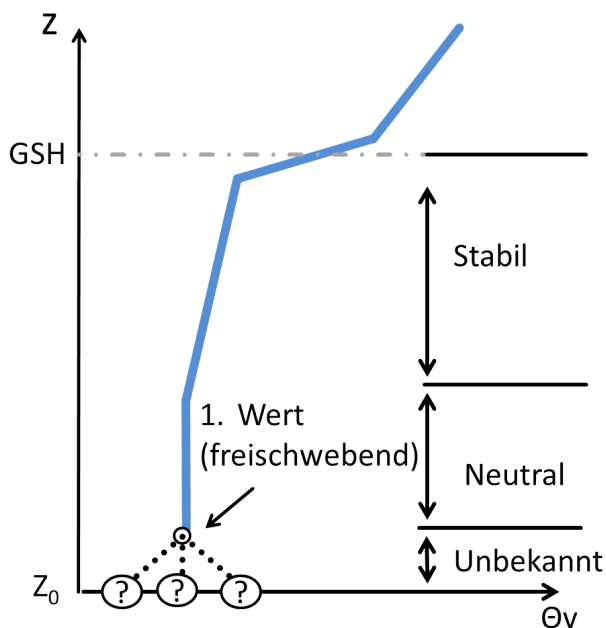
### Digitalisierte Profile

In Abbildung 4.2a ist auch zu erkennen, dass die Rohdaten der Temperaturmessungen digitalisiert sind. Dies resultiert aus den geringen Aufstiegeschwindigkeiten der RAS zwischen  $1-3 \text{ ms}^{-1}$  und der geringen Auflösung in der Datenaufzeichnung. Die Digitalisierung wird mit einem gleitenden Mittel der Länge von 10 Sekunden bereinigt. Dieses Vorgehen ist in der Signaltheorie typisch bei Zeitreihenanalysen und wird auch als Tiefpassfilter mit gleichgewichteter Form bezeichnet. Im Weiteren werden alle geglätteten Vertikalprofile auf Werte in einem vertikalen Abstand von 20 m ausgehend von 840 m reduziert. Der erste Datenpunkt unterhalb von 840 m basiert auf der Rechnung nach Gleichung [4.1].

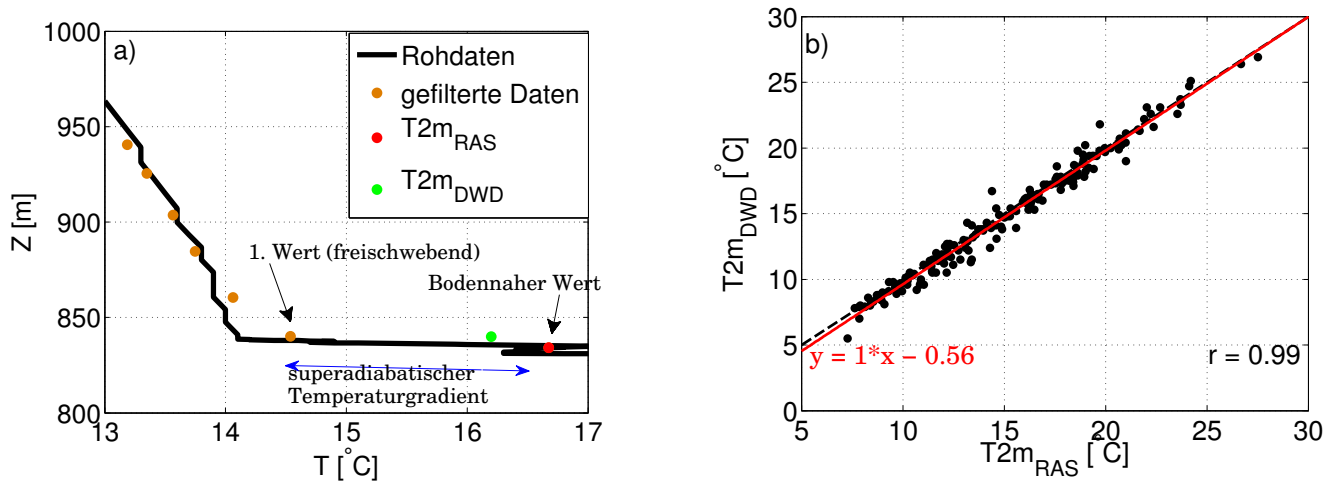
### Methoden zur Bestimmung der Stabilität mit Radiosonden

Die Bestimmung der atmosphärischen Stabilität basiert häufig auf der Sichtprüfung von Profilen der virtuellen potentiellen Temperatur ( $\theta_v$ ) (Stull, 1988). Nimmt  $\theta_v$  mit der Höhe zu, ist dies ein Indiz für eine stabil geschichtete Atmosphäre, während eine Abnahme mit einer turbulenten und labilen Atmosphäre interpretiert werden kann (vgl. Abb. 4.1). Allerdings weist Stull (1993) darauf hin, dass ein Profil nicht schichtweise, sondern über die gesamte Höhe bis zur PGSH klassifiziert werden sollte.

Alternativ sollte die Stabilitätsbestimmung auch nach objektiven Methoden durchgeführt werden. Dazu



**Abb. 4.1:** Schema zur Problematik der Grenzschichthöhen- und Stabilitätsbestimmung bei unbekanntem Temperaturgradienten oberhalb der bodennahen Schicht.



**Abb. 4.2:** a) Temperaturprofil aus den Rohdaten (digitalisiert), die überarbeiteten Daten (orange) und die repräsentative Bodentemperatur aus den RAS (rot) und aus der DWD-Wetterhütte (grün). b) Korrelation zwischen diesen beiden bodennahen Temperaturen für alle RAS-Aufstiege (Punkte), 1:1 Linie (schwarz gestrichelt), Regressionsgerade (rot).

wird oftmals der bodennahe Gradient der potentiellen Temperatur verwendet. Liu and Liang (2010) berechnen dazu den Temperaturgradienten zwischen dem fünften und zweiten Niveau über Grund. Allerdings ist diese Methode stark abhängig von der Vertikalaufösung und die Einteilung in die Stabilitätsklassen erfolgt dennoch nach subjektiven Schwellenwerten. In dieser Arbeit wird eine ähnliche Methode nach Leuenberger et al. (2010) gewählt. Hierzu wird die Steigung über den Regressionskoeffizienten ( $\beta$ ) mit einer linearen Regression zwischen den ersten vier verfügbaren Schichten von Höhe ( $z$ ) und  $\theta_v$  ausgehend vom Boden mit der Gleichung [4.3] berechnet.

$$\beta = \frac{\sum_{k=1}^4 z(k)\theta_v(k) - 1/4 \sum_{k=1}^4 z(k) \sum_{k=1}^4 \theta_v(k)}{\sum_{k=1}^4 z(k)^2 - 1/4 \sum_{k=1}^4 z(k) \sum_{k=1}^4 z(k)} \quad (4.3)$$

Ist der Wert  $\beta > 0$ , liegt eine stabile, sonst eine labile Schichtung vor. Die Methode reagiert nicht sensitiv auf eine Erweiterung der Schichten von  $k = 4$  auf  $k = 6$  und sorgt bei lediglich 3% der Profile für eine Änderung der Stabilität. Diese Profile liegen aber auch noch in der Übergangsphase am Morgen und am Abend. Demnach gewährleistet diese Methode eine Kontinuität in der Stabilitätsklassifizierung basierend auf den bodennahen Messwerten aus den RAS. In Abbildung 4.3 ist die Häufigkeitsverteilung von  $\beta$  zu verschiedenen Tageszeiten am jeweiligen Messtag zusammengefasst. Erwartungsgemäß sind häufig stabile Bedingungen in der Nacht und labile Bedingungen am Tag zu beobachten.

## 4.2 Die planetare Grenzschichthöhe während der Messkampagne PARADE

Die Messkampagne PARADE im Sommer 2011 ist von zahlreichen Änderungen in der Großwetterlage bestimmt. Häufige Verschiebungen von Trögen und Rücken sorgen in der Messregion für eine abwechslungsreiche Wettersituation (Kapitel 3).

Abbildung 4.4 zeigt den zeitlichen Verlauf der vertikalen Verteilung der äquivalentpotentiellen Temperatur  $\theta_e$  und der PGSH aus den RAS-Messwerten. Die dargestellte PGSH ist eine Kombination aus den verschiedenen bekannten Methoden (Kapitel 3 und Tab. 3.2) und wird später in diesem Kapitel erklärt. Die Farben geben kühle und trockene Tage (blau) oder warme und feuchte Tage wieder (rot). Die Erhaltungsgröße  $\theta_e$  dient häufig als passiver Tracer, da diese Größe unabhängig vom atmosphärischen Zustand

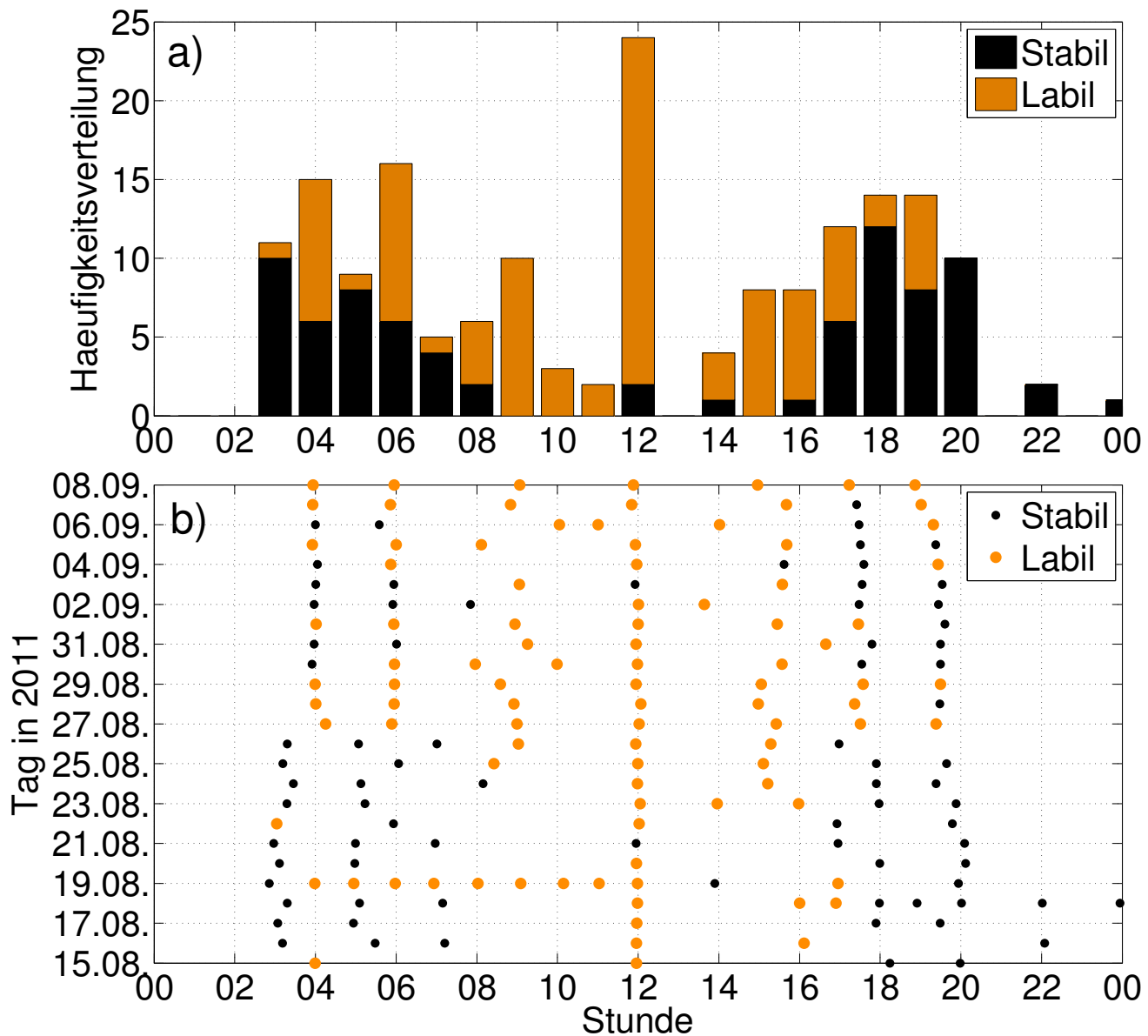
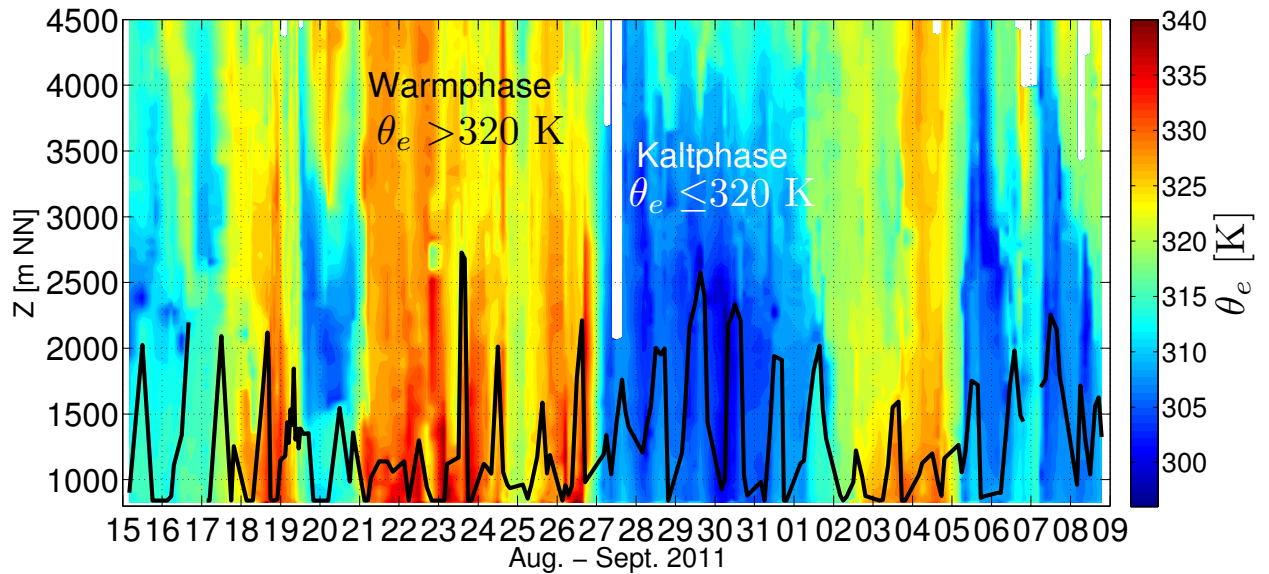


Abb. 4.3: a) Häufigkeitsverteilung und b) zeitliche Verteilung von  $\beta$  zu den Zeitpunkten der Radiosondenaufstiege. Eine stabile Schichtung (schwarz) liegt vor, wenn  $\beta > 0$  ist, sonst liegt eine labile Schichtung (orange) vor.

(feucht oder trocken) ist und damit einen Einblick in die großräumige Luftmassenzusammensetzung gibt. Interessanterweise ist in Warmperioden eine niedrigere PGSH zu beobachten als in kühleren Perioden, wenn die PGSH relativ mächtig ist. Dies überrascht, da wärmere Temperaturen in Verbindung mit höherer Einstrahlung stehen und somit auch das Grenzschichtwachstum gefördert werden sollte. Möglicherweise spielt die Großwetterlage eine zentralere Rolle, da während der Warmperioden eine Hochdruckwetterlage (Kapitel 3) und somit großskalige Subsidenz vorliegt. Um diesen Zusammenhang näher zu untersuchen, werden im Folgenden verschiedene Vertikalprofile zu den unterschiedlichen Temperaturperioden (Warmphase/Kaltphase) präsentiert.



**Abb. 4.4:** Zeitlicher Verlauf der PGSH kombiniert aus verschiedenen Methoden und die vertikale Struktur der äquivalentpotentiellen Temperatur aus den Radiosondenaufstiegen.

### 4.3 Beispiele zur Bestimmung der PGSH

Es werden im Folgenden drei Radiosondenaufstiege vorgestellt, die unter verschiedenen atmosphärischen Bedingungen gemessen haben und zum Verständnis der ermittelten PGSH beitragen sollen. Die visuelle Darstellung beinhaltet verschiedene Vertikalprofile der Temperaturen, der Feuchte, des Windes, der  $RI_B$  und der äquivalentpotentiellen Temperatur sowie die bestimmten Grenzschichthöhen nach den in Tabelle 3.2 vorgestellten Methoden. Neben den Grenzschichthöhen aus den RAS-Profilen wird zusätzlich noch die mittlere Aerosolschichthöhe (Stundenmittel) anhand der Rückstreuprofile des Ceilometers dargestellt. Der Bewölkungsgrad wird bestimmt über das Verhältnis aus der Verfügbarkeit von ungestörten und durch Wolken gestörten Rückstreuprofilen innerhalb einer Stunde.

#### 1) Radiosondenaufstieg in der Kaltperiode + Labil + Wolkenfrei

Abbildung 4.5 zeigt ein Beispiel für eine vollständig entwickelte konvektive PGS am 06.09. unter labilen Bedingungen. In diesem Fall ist die PGSH bei 1981 m (NN) bestimmt worden mit einer hohen Übereinstimmung der verschiedenen verfügbaren Methoden im Bereich von rund 50 m. Trotz des hohen Anteils an Wolken hat auch das Ceilometer in dieser Höhe den Oberrand der Aerosolschicht detektiert. Aber da das Vertikalprofil der relativen Feuchte ( $RH$ ) stets unter 90 % verbleibt, ist die RAS wohl nicht durch die Wolken hindurch geflogen (Wang and Rossow, 1995).

#### 2) Radiosondenaufstieg in der Kaltperiode + Labil + Wolken

Abbildung 4.6 zeigt die verschiedenen Vertikalprofile vom 29.08. um 15:03 UTC, die durch Wolken beeinflusst wurden. Dies ist anhand des Vertikalprofils der relativen Feuchte mit Werten von  $RH > 90\%$  deutlich zu erkennen. Zu beachten ist, dass beim Einsetzen von Kondensation die Größe  $\theta_v$  nicht mehr erhalten ist und dies eine mögliche Fehlerquelle bei der Grenzschichthöhenbestimmung sein kann. Unter diesen Umständen ist es sinnvoll, das Vertikalprofil der Zustandsgröße  $\theta_e$  zur Bestimmung der PGSH mit heranzuziehen. In diesem Profil ist erst in rund 2500 m Höhe eine Anomalie zu beobachten und die PGSH wird auch von drei Methoden in der Nähe dieser Höhe detektiert. Die weiteren Methoden (unter anderem auch die  $RI_B$ -Methode) weichen beträchtlich von dieser Höhe ab. Nach der Sichtung der Temperatur-, Feuchte- und Windprofile wird die PGSH subjektiv nach einer der drei nächstliegenden Methode bestimmt. Indikatoren können dabei große Gradienten in Temperatur-, Feuchte- oder Windprofilen sein. Demnach wird die PGSH für dieses Profil bei 2577 m (NN) festgelegt.

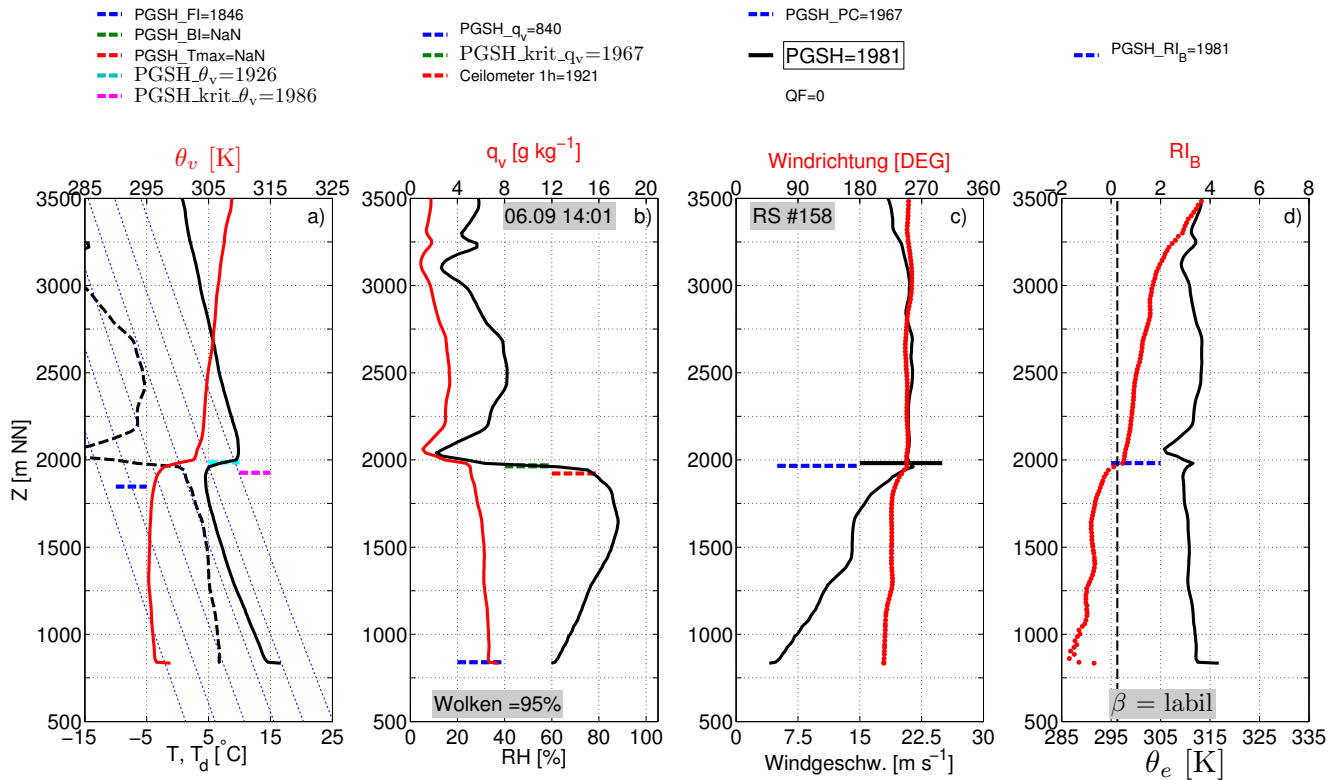


Abb. 4.5: Vertikalprofile von verschiedenen gemessenen und abgeleiteten Variablen der Radiosonde am 06.09.2011 14:02 UTC. Zusätzlich sind aus verschiedenen Methoden abgeleitete Grenzschichthöhen und die „finale“ PGSH eingezeichnet und in der Legende notiert.

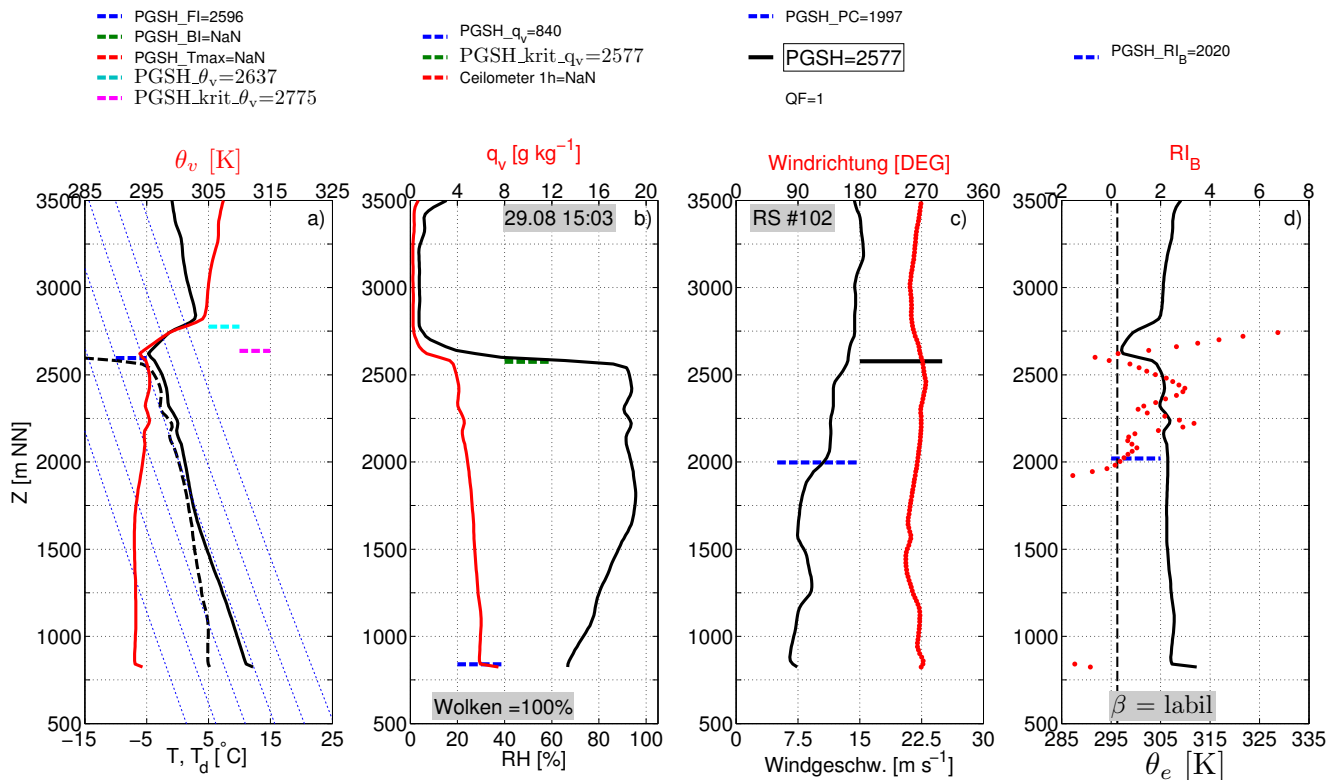


Abb. 4.6: Wie Abb. 4.5 für den Radiosondenaufstieg am 29.08.2011 15:03 UTC.

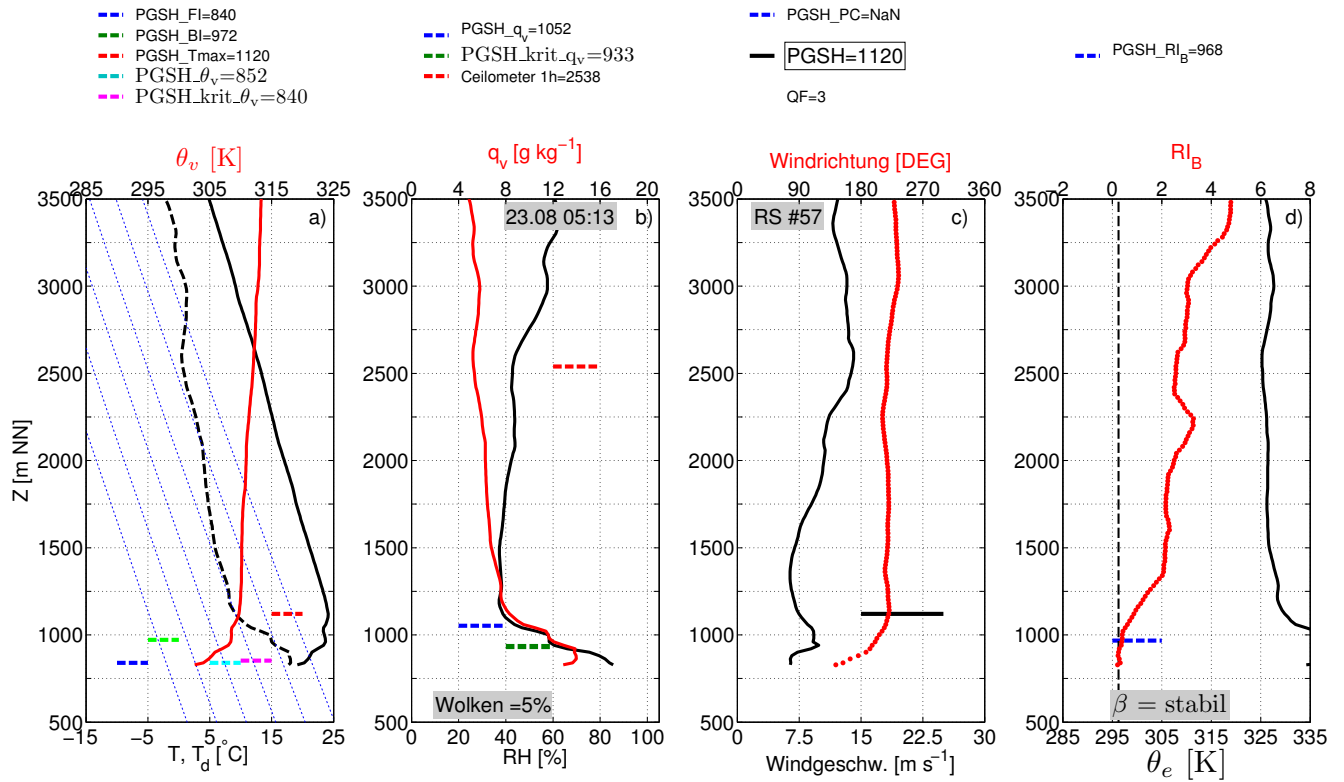


Abb. 4.7: Wie Abb. 4.5 für den Radiosondenaufstieg am 23.08.2011 05:13 UTC.

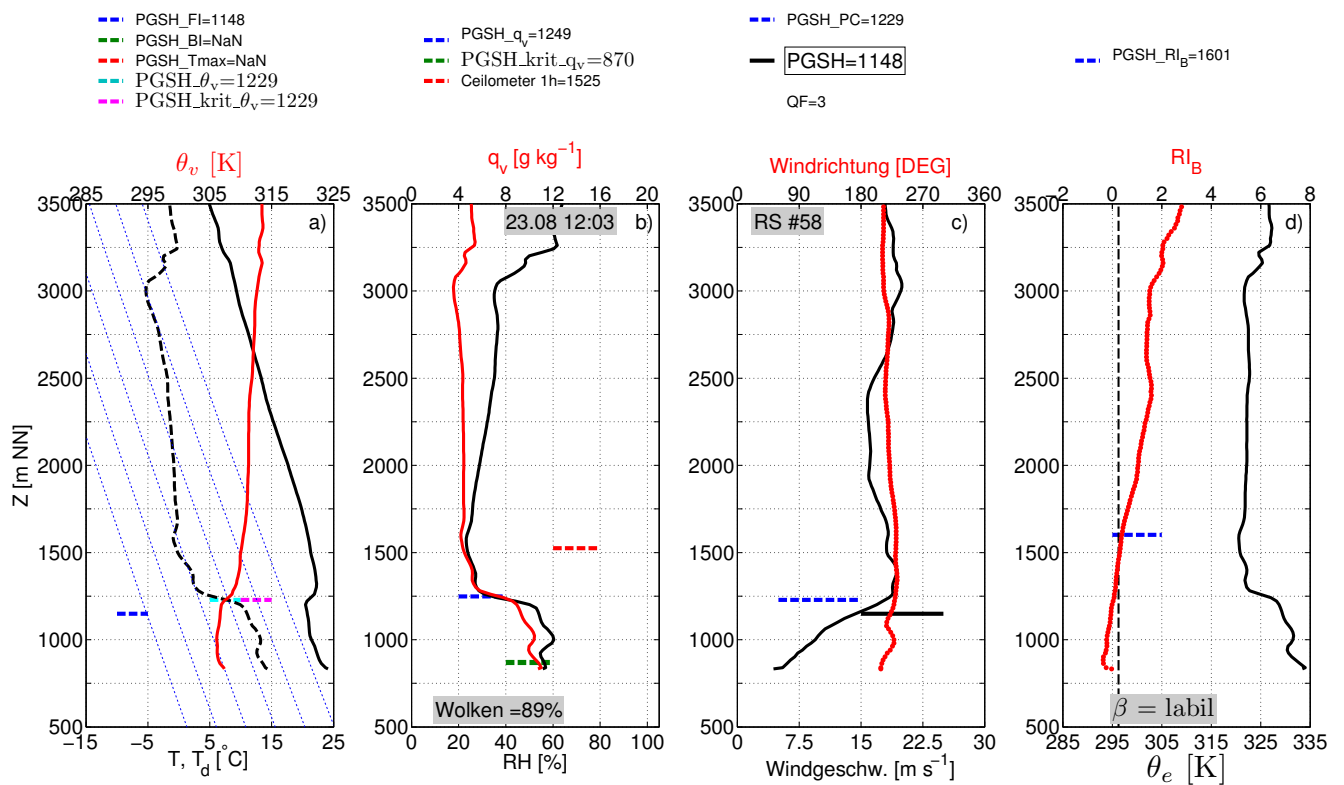
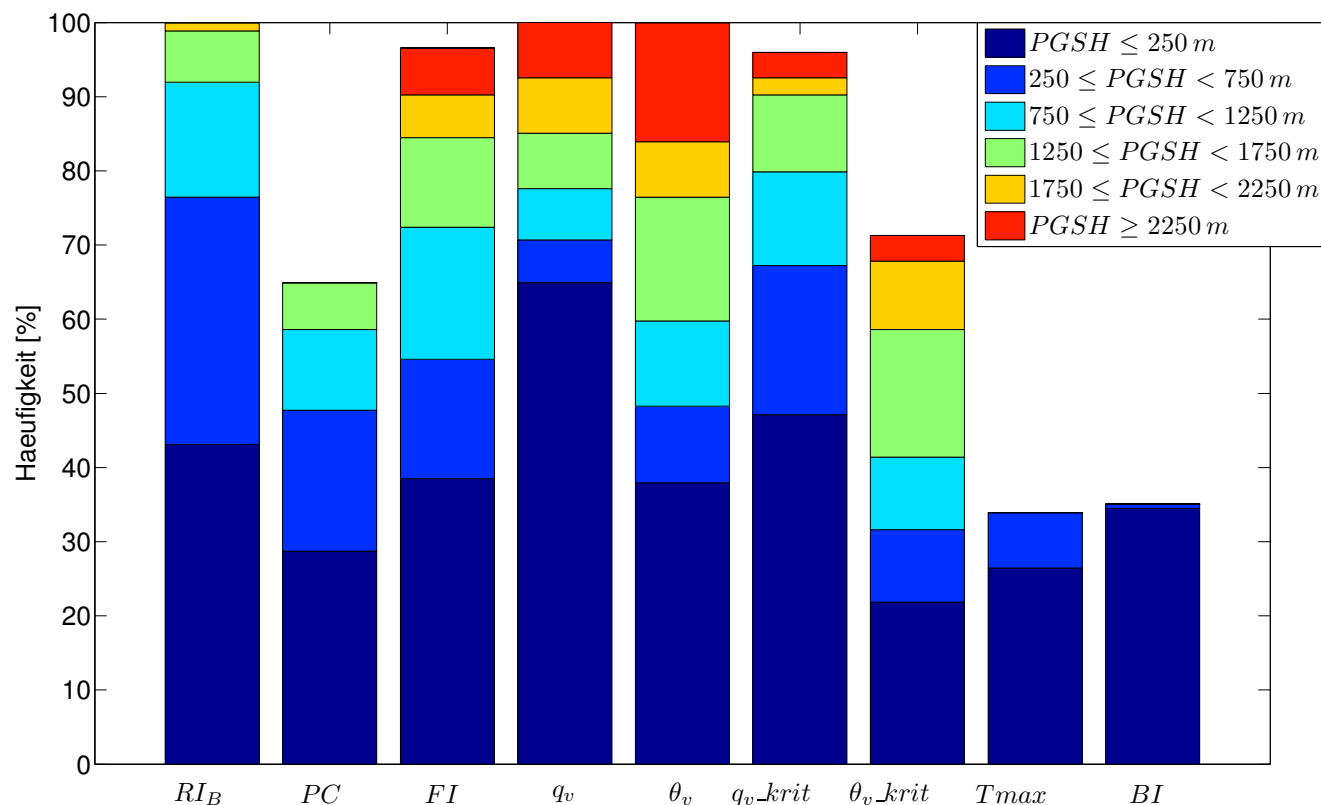


Abb. 4.8: Wie Abb. 4.5 für den Radiosondenaufstieg am 23.08.2011 12:03 UTC.



**Abb. 4.9:** Kumulative Häufigkeit der berechneten Grenzschichthöhen nach den verwendeten Methoden. Die Farben geben verschiedene Höhenbereiche an. Werden keine 100 % erreicht, konnte unter bestimmten Bedingungen keine Grenzschichthöhe bestimmt werden (z.B. lässt sich die Paket-Methode unter stabilen Bedingungen nicht nutzen).

### 3) Radiosondenaufstieg in der Warmperiode + Stabil + Wolkenfrei

Im Gegensatz zu den Profilen in der Kaltperiode zeigt das Vertikalprofil in der Warmperiode vom 23.08. um 05:13 UTC eine sehr stabile Schicht (Abb. 4.7). Oberhalb der bodennahen Inversion liegt eine homogene und sehr warme und trockene Luftmasse. Diese Inversion mit einer Mächtigkeit von fast 10 K muss durch die solare Einstrahlung erst erwärmt werden, bevor es zu einem Anwachsen der PGS kommen kann. Falls dies nicht geschieht, bleibt es bei der relativ niedrigen PGSH über den gesamten Tag (Abb. 4.8).

Dies könnte eine mögliche Erklärung für die relativ niedrigen Grenzschichthöhen während der Warmperiode sein. Bevor dieser Zusammenhang weiter untersucht werden kann, wird im folgenden Unterkapitel geklärt, welche Methode die PGSH am wahrscheinlichsten wiedergibt, wie die detektierte PGSH zu bewerten ist und wie die Methoden miteinander verknüpft werden können.

## 4.4 Unsicherheit und Qualität der PGSH-Bestimmung

### (i) Welche Methode ist am besten zur PGSH-Bestimmung geeignet?

Wie in den letzten Beispielen gezeigt, lässt sich aus der Vielzahl aller Methoden im besten Fall eine gemeinsame PGSH (Abb. 4.5) bestimmen, oder aber jede Methode liefert einen anderen Wert (Abb. 4.6). In allen Fällen wurde eine  $PGSH < 4\text{ km}$  bestimmt.

Abbildung 4.9 zeigt einen groben Vergleich zwischen den ermittelten Grenzschichthöhen aller Methoden. Die Grenzschichthöhen wurden dazu in verschiedene Intervalle eingeteilt und die Häufigkeiten kumuliert. Am häufigsten werden von allen Methoden Grenzschichthöhen kleiner 250 m ermittelt und die Häufigkeit nimmt mit zunehmender Höhe immer weiter ab, was bereits auch laut den Tagesgängen in Abb. 4.4 zu erwarten ist. Werden Häufigkeiten kleiner als 100 % erreicht, konnte die betreffende Methode keine PGSH ermitteln. Dies trifft auf fast alle Methoden außer der  $RI_B$ ,  $q_v$ - und  $\theta_v$ -Methode zu und liegt häufig an der

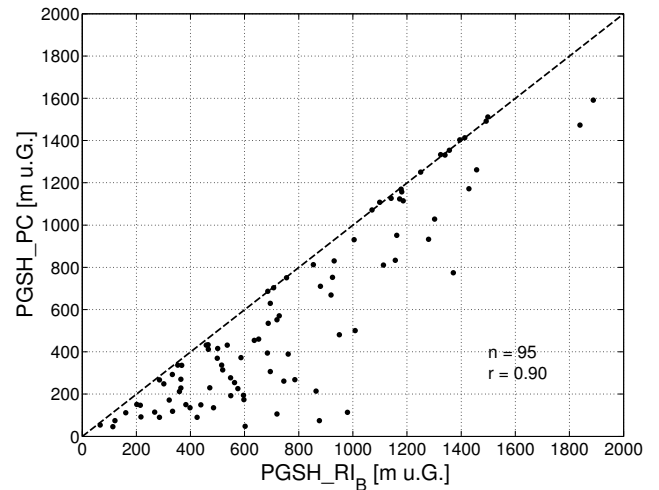


atmosphärischen Stabilität. Die PC-Methode verfehlt unter stabilen Bedingungen die Bestimmung einer PGSH, für die BI- bzw. Tmax-Methode gilt dies unter labilen Bedingungen. Auch wenn die kumulierten Verteilungen ähnlich aussehen (z. B.:  $FI$  und  $\theta_v\_krit$ ), so lässt sich aus dieser Darstellung keine Information über die zeitliche Übereinstimmung gewinnen.

### Vergleich der Zeitreihen mit Korrelationen und statistischen Tests

Um die Grenzschichthöhen aus den verschiedenen Methoden direkt miteinander vergleichen zu können, eignen sich häufig Korrelationen. Abbildung 4.10 zeigt den direkten Vergleich zwischen der  $RI_B$ -Methode und der Paket-Methode nur unter labilen Bedingungen.

Die Pearsonkorrelation  $r = 0.90$  zwischen den beiden Methoden ist sehr hoch, doch es ist auch zu erkennen, dass häufig die  $PGSH_{PC}$  um mehrere Hundert Meter gegenüber der  $PGSH_{RI_B}$  unterschätzt wird, aber nie überschätzt. Die Grenzschichthöhendifferenz dieser beiden Methoden ist demnach nicht im Mittel um die Null verteilt. Zur Berechnung der Pearsonkorrelation muss aber gewährleistet sein, dass die Differenz beider Zeitreihen eine Normalverteilung abbildet. Um zu dies zu testen, können verschiedene bekannte statische Methoden (u. a. Chi-Quadrat-Test, Kolmogorow-Smirnow-Test, Anderson-Darling-Test, Lilliefors-Test,

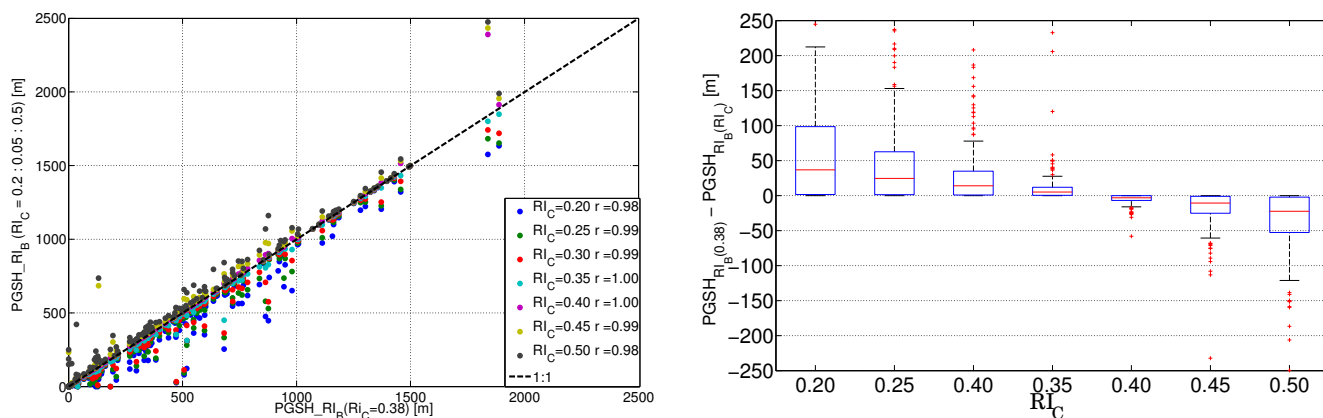


**Abb. 4.10:** Vergleich der PGSH aus der  $RI_B$ -Methode mit der Parcel-Methode nur unter labilen Bedingungen.

Sapiro-Wilk-Test) mit verschiedenen Vor- und Nachteilen verwendet werden (NIST/SEMATECH, 2014). Beispielhaft werden beim Kolmogorow-Smirnow-Test (Massey, 1951) der Erwartungswert und die Standardabweichung der angenommenen Normalverteilung benötigt und abgeschätzt. Hingegen kann der Anderson-Darling-Test bereits für Stichproben ab  $n \geq 10$  verwendet werden und braucht keine Abschätzung von Erwartungswert und Standardabweichung (Scholz and Stephens, 1987). Nach diesem Test weisen aber alle Kombinationsmöglichkeiten zur Berechnung der Grenzschichthöhendifferenzen keine Normalverteilung auf. Unter diesen Umständen wird der Spearman-Korrelationskoeffizient berechnet, da dieser bei unterschiedlichen Häufigkeitsverteilungen angewendet werden kann. Wie bereits zu erwarten ist, liefert aber auch dieser nur geringe Korrelationskoeffizienten und somit Übereinstimmungen (Tab. 4.1). Angesichts dieser unterschiedlichen Zeitreihen ist es nicht möglich die Grenzschichthöhen aller Methoden gegeneinander zu vergleichen. Dennoch wäre er wünschenswert, eine repräsentative Grenzschichthöhe zu

	$RI_B$	$PC$	$FI$	$q_v$	$\theta_v$	$q_v\_krit$	$\theta_v\_krit$	$Tmax$	$BI$
$RI_B$	1	0.86	0.29	-0.33	0.59	0.34	0.72	0.30	0.18
$PC$	0.00	1	0.43	-0.10	0.16	0.21	0.41	0.51	-0.02
$FI$	0.00	0.00	1	-0.09	0.34	0.26	0.34	-0.32	-0.67
$q_v$	0.00	0.29	0.23	1	-0.21	0.07	-0.23	-0.27	-0.08
$\theta_v$	0.00	0.08	0.00	0.00	1	0.35	0.93	0.39	0.16
$q_v\_krit$	0.00	0.03	0.00	0.37	0.00	1	0.39	-0.10	0.12
$\theta_v\_krit$	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	1	0.32	0.30
$Tmax$	0.02	0.02	0.01	0.04	0.00	0.43	0.02	1	0.52
$Bi$	0.17	0.98	0.00	0.52	0.22	0.37	0.03	0.00	1

**Tab. 4.1:** In der oberen rechten Ecke ist der Spearman-Korrelationskoeffizient gegeben. In der unteren Ecke ist die dazu gehörige statistische Signifikanz eingetragen, welche gegeben ist, wenn die Werte kleiner als 0.05 % sind.



**Abb. 4.11:** Links: Korrelation der Grenzschichthöhen mit der  $RI_B$ -Methode ( $RI_C = 0.38$ ) und mit alternativen Schwellenwerten. Rechts: Differenz zwischen den Grenzschichthöhen mit  $RI_C = 0.38$  und den weiteren Schwellenwerten dargestellt als Box-Whisker-Plot. Die Länge der Whisker beinhaltet zu 95 % alle Daten. Eine detaillierte Erklärung findet sich im Anhang.

bestimmen und bestenfalls mit einem Indikator die Qualität der festgelegten Grenzschichthöhe aufzuzeigen.

### Bestimmung einer repräsentativen PGSH

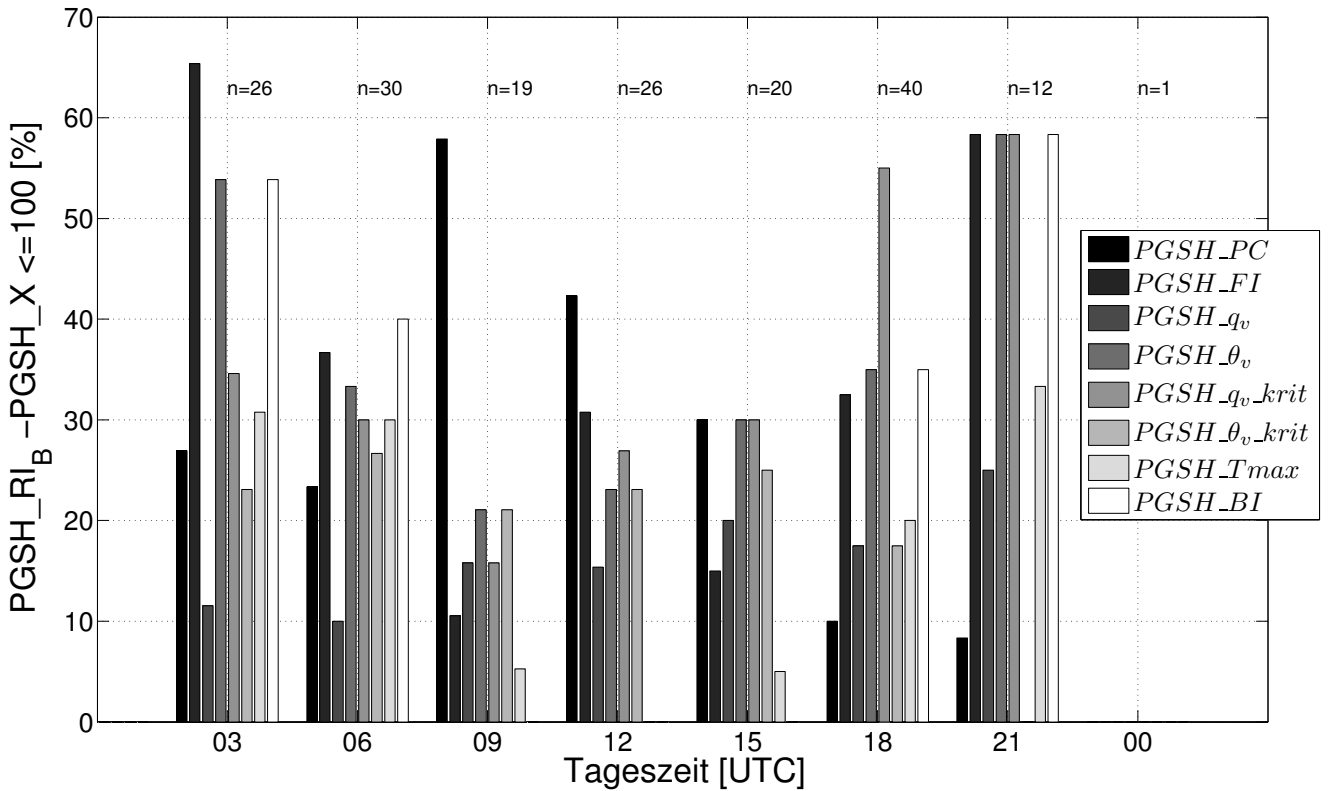
Nach Sichtprüfung aller Profile nach typischen Indikatoren für eine PGSH (u.a. Temperaturinversion, Feuchteabnahme, Änderung der Windgeschwindigkeit) kann in 85 % aller Fälle die PGSH mit der  $RI_B$ -Methode bestimmt werden.

Wie vertrauenswürdig ist die  $RI_B$ -Methode? Die  $RI_B$ -Methode zur Berechnung der PGSH mit einem Schwellenwert von  $RI_C = 0.38$  wird häufig aufgrund ihrer universellen Einsetzbarkeit unter sowohl stabilen als auch labilen Bedingungen und der allgemeinen objektiven Herangehensweise gegenüber den anderen Methoden bevorzugt und so auch in dieser Arbeit. Des Weiteren ist diese Methode weit in numerischen Wettervorhersagemodellen verbreitet. Wie bereits oben erwähnt, liegt die Trefferwahrscheinlichkeit der  $RI_B$ -Methode nach subjektiver Einschätzung bei 85 %. Um eine Aussage über die Abhängigkeit des Schwellenwerts zur berechneten PGSH mit der  $RI_B$ -Methode treffen zu können, wird der Schwellenwert  $RI_C$  im Bereich von 0.2 bis 0.5 variiert und gegen die ermittelte  $PGSH_{RI_B}$  mit dem Schwellenwert  $RI_C = 0.38$  verglichen. Abbildung 4.11 zeigt, dass die Spearman-Korrelationskoeffizienten zwischen den verschiedenen Grenzschichthöhen mit  $r > 0.98$  sehr hoch sind, allerdings ist auch die Variabilität groß und einige Ausreißer liegen über 700 m. Die Ausreißer liegen aber außerhalb der Whisker, die 95 % der Werte beinhalten. Die Mediane zeigen deutlich, dass die Differenzen zu jedem Schwellenwert kleiner als 50 m sind. Die mittlere Abweichung aus allen Schwellenwerten beträgt rund 100 m. Demnach ist die Grenzschichthöhenbestimmung mit der  $RI_B$ -Methode unabhängig vom gewählten Schwellenwert mit einer Sensitivität von rund 100 m möglich.

Es ist nun zu klären, wie gut die verschiedenen Methoden mit der  $RI_B$ -Methode mit dieser Sensitivität übereinstimmen. Eine gute Übereinstimmung gilt, wenn die Differenz von  $PGSH_{RI_B}$  und den verschiedenen verfügbaren Methoden kleiner als 100 m ist (Gleichung [4.4]). Der Wert von 100 m ist die mittlere Abweichung zwischen der PGSH aus der  $RI_B$ -Methode mit unterschiedlichen Schwellenwerten.

$$|PGSH_{PC, FI, etc.} - PGSH_{RI_B}| \leq 100 m \quad (4.4)$$

In Abbildung 4.12 ist dargestellt, wie häufig zu verschiedenen Tageszeiten diese Übereinstimmung gilt. Direkt ersichtlich ist, dass trotz der erhöhten Sensitivität die Übereinstimmungen selten mehr als 50 % betragen, unabhängig von der Tageszeit. Dabei sind durchaus Unterschiede zwischen den einzelnen Methoden zu beobachten. Während die PC-Methode bis zu 58 % Übereinstimmung am Mittag unter konvektiven Bedingungen zeigt, sind es in der Nacht oder am Morgen weniger als 10 %. Auch die Übereinstimmungen der weiteren Methoden variieren zwischen 5 % und 58 % zu den verschiedenen Tageszeiten. Mit Ausnahme der PC-Methode ist die geringste Übereinstimmung der anderen Methoden von 9 bis 12 UTC zu beobachten. Dieser Zeitraum bildet den Übergangsbereich zwischen der stabilen Schichtung und der



**Abb. 4.12:** Übereinstimmung zwischen der PGSH mit der  $RI_B$ -Methode und den verschiedenen Methoden mit absoluter Differenz von maximal 100m. Die Zuteilung der Schattierungen ist der Legende zu entnehmen, die Abkürzungen der Tabelle 3.2.

Entstehung der neuen konvektiven Grenzschicht; zusätzlich wird dadurch die Bestimmung der PGSH erschwert (Hennemuth and Lammert, 2006).

Aus dieser Analyse lässt sich demnach auch schließen, dass die Grenzschichthöhen aus der  $RI_B$ -Methode zu ca. 50% nicht mit den anderen übereinstimmen.

Bei klaren konvektiv durchmischten Profilen mit scharfen Inversionen sind die Differenzen zwischen den verschiedenen Methoden häufig sehr gering (vgl. Abb. 4.5). Deutlich komplexere Vertikalstrukturen, Wolken oder schwache Temperatur- oder Feuchtegradienten sorgen dafür, dass die Methoden stark voneinander abweichen (vgl. Abb. 4.6). Des Weiteren hängen einige Methoden von der atmosphärischen Stabilität ab und sind überhaupt nicht in der Lage, eine PGSH zu ermitteln.

Daher wird nun eine finale PGSH (im weiteren GSH) für jeden RAS-Aufstieg mit den Ergebnissen der  $RI_B$ -Methode definiert. Dies folgt aus den vorangegangenen Untersuchungen und der universellen Einsetzbarkeit der  $RI_B$ -Methode. Unabhängig von der Wahl des kritischen Wertes ist die PGSH mit einer Genauigkeit von 100m in allen Fällen bestimmbar und stimmt in 85% mit der subjektiven Abschätzung überein.

Die Fälle, die nicht mit der  $RI_B$ -Methode bestimmt werden konnten, werden subjektiv durch die nächstliegende Methode ersetzt:

$$GSH := \begin{cases} PGSH_{RI_B} & \text{Übereinstimmung nach Sichtprüfung} \\ & \text{der Vertikalprofile.} \\ PGSH_{\text{Andere Methode}} & \text{Verwendung einer Methode, die am nächsten} \\ & \text{die subjektiv bestimmte PGSH repräsentiert.} \end{cases} \quad (4.5)$$

### (ii) Qualitätsmaß der GSH

Wie gezeigt wurde, ist es selten ausreichend, nur eine Methode zu nutzen, um die GSH zu ermitteln. Der Vergleich aller Methoden zeigt häufig große Abweichungen. Hervorzuheben ist dennoch die  $RI_B$ -Methode. Diese Methode hat zu jeder Zeit eine PGSH berechnet und nach subjektivem Vergleich nur in 27 Fällen

$\Delta GSH_0$	Differenz
<b>1</b>	$GSH - PGSH_{PC}$
<b>2</b>	$GSH - PGSH_{FI}$
<b>3</b>	$GSH - PGSH_{qv}$
$\vdots$	$\vdots$

**Tab. 4.2:** Bestimmung des Vektors  $\Delta GSH_0$  basierend auf der Arbeit von Beyrich and Leps (2012).

QF	Kriterium
<b>0</b>	$\Delta GSH(1) < RUC10$ und $\Delta GSH(2) < RUC10$
<b>2</b>	$\Delta GSH(1) < RUC10$ und $RUC10 \leq \Delta GSH(2) < RUC25$
<b>4</b>	$RUC10 \leq \Delta GSH(1) < RUC25$ und $RUC10 \leq \Delta GSH(2) < RUC25$
<b>6</b>	$RUC25 \leq \Delta GSH(1)$
<b>8</b>	Keine PGSH gefunden oder Daten teilweise unvollständig.

**Tab. 4.3:** Bestimmung der Qualität der detektierten PGSH mit verschiedenen Kriterien nach Beyrich and Leps (2012). Eine detaillierte Beschreibung ist im Text gegeben.

(15%) nicht die richtige Höhe ermittelt. Aus dieser Studie wird klar, dass zumindest jede bestimmte PGSH eine Markierung (engl. FLAG) besitzen sollte, die die Qualität der ermittelten GSH aufweist und somit Vertrauen in die Richtigkeit der detektierten PGSH ermöglicht. Erstaunlicherweise wird in der Literatur diese Problematik zwar erwähnt (Seibert et al., 2000), aber eine allgemein gültige Methode zur Beurteilung der Qualität der verwendeten PGSH wurde bisher nicht festgelegt.

Eine Methode für solch eine Qualitätsanalyse wurde von Beyrich and Leps (2012) für operationelle RAS-Aufstiege vorgestellt; sie wird hier auf die nicht operationellen RAS-Aufstiege leicht modifiziert angewendet. Im Wesentlichen werden Differenzen ( $\Delta GSH_0$ ) zwischen der „finalen“ Grenzschichthöhe ( $GSH$ ) und den Grenzschichthöhen aus allen verfügbaren Methoden (außer der  $RI_B$ -Methode) berechnet (Tab. 4.2) und nach der Größe sortiert, mit den niedrigsten Differenzen beginnend.

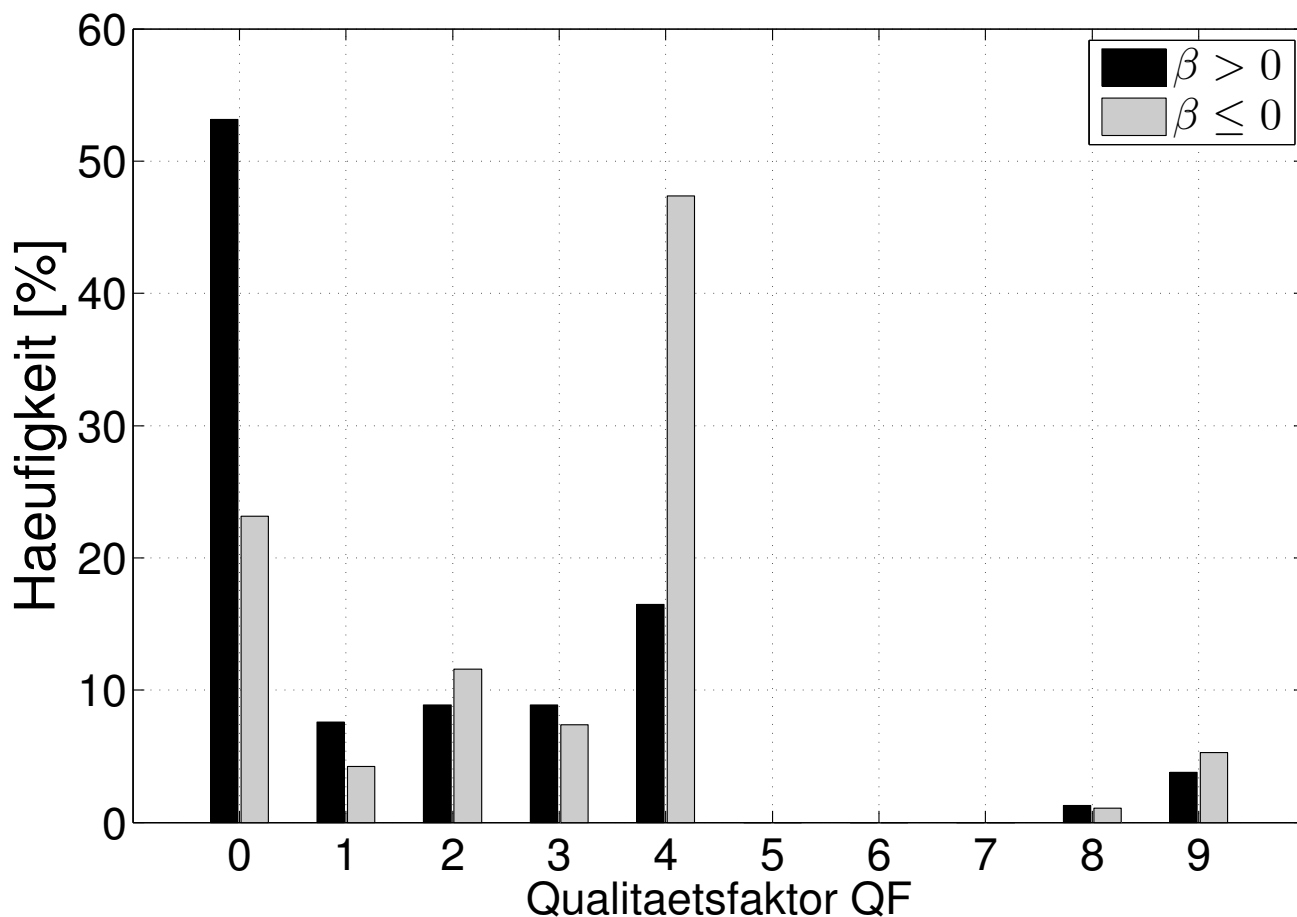
$$\Delta GSH = \text{aufwärts sortieren}(\Delta GSH_0) \quad (4.6)$$

Die ersten beiden Werte dieses Vektors ( $\Delta GSH(1)$  und  $\Delta GSH(2)$ ) werden gegen zwei Unsicherheitsmaße (RUC) verglichen. Nach den Autoren werden diese Werte festgesetzt bei  $RUC10 = 50$  m (10% von 500 m) und  $RUC25 = 125$  m (25% von 500 m).

Tabelle 4.3 zeigt, für welche Zusammensetzung welcher Qualitätsfaktor (QF) gesetzt wird. Zusätzlich wird zu diesem Qualitätsmaß ein Wert=1 hinzuaddiert, falls dieses Profil subjektiv per Sichtprüfung korrigiert werden musste. Daraus folgend sind in Abbildung 4.13 die relative Häufigkeit und der Qualitätsfaktor der finalen Grenzschichthöhen unter stabilen und labilen Bedingungen dargestellt. Auffällig ist die gute Qualität (QF = 0) der berechneten Grenzschichthöhen unter stabilen Bedingungen. Diese gute Übereinstimmung resultiert aber aus sehr niedrigen mittleren Grenzschichthöhen. In 27 von 41 Fällen ist die PGSH direkt über Grund bestimmt worden. Die übrigen 14 Fälle zeigen eine mittlere PGSH von 40 m mit drei Ausreißern von mehr als 450 m (nicht gezeigt). Anders sieht es unter labilen Verhältnissen aus. Am häufigsten werden Grenzschichthöhen mit einer Qualität (QF = 4) bewertet.

Nach dieser Qualitätsbeurteilung (QF = 0 bis 4) stimmt die finale Grenzschichthöhe zu 95% mit mindestens drei verschiedenen Methoden überein. Die Differenz dieser Methoden beträgt dabei maximal 125 m (RUC25) zueinander.

Wie diese GSH im Zusammenhang mit der eingangs gezeigten zeitlichen Variation während der Warm- und Kaltperioden (Abb. 4.4) mit den lokalen Bedingungen (Wolken, Temperatur, Wind) steht, wird im folgenden Abschnitt untersucht.



**Abb. 4.13:** Häufigkeitsverteilung der Qualität aller bestimmten Grenzschichthöhen in Abhängigkeit der atmosphärischen Stabilität.  $QF = 0$  bedeutet eine Übereinstimmung der PGSH von mindestens drei Methoden mit einer Differenz von weniger als 50 m und  $QF = 4$  kleiner gleich 125 m. Siehe Tabelle 4.3 für mehr Details.

## 4.5 Einfluss lokaler Bedingungen auf die GSH

In den folgenden Abschnitten wird die GSH auf statistische Zusammenhänge hin untersucht, sodass Auswirkungen der lokalen meteorologischen Bedingungen (Wolken, Temperatur, Wind) auf dem KF auf die beobachteten Grenzschichthöhen ermittelt werden können.

### Einfluss von Wolken

In den Abbildungen 4.5 - 4.7 wurde dargestellt, wie die GSH unter verschiedenen Bedingungen bestimmt wurde. Ob eine RAS durch Wolken geflogen ist, lässt sich anhand der relativen Feuchte erkennen. Hierzu wird bis zu einer Höhe von 4 km über Grund der maximale Wert der relativen Feuchte gesucht. Ist dieser Wert größer gleich 90 %, so befindet sich die RAS innerhalb einer Wolke, ansonsten nicht (Wang and Rossow, 1995). Wolkenbildung setzt Kondensationswärme frei und führt zu einer Labilisierung aufsteigender Luftmassen und zu einer Vergrößerung der Einmischungszone und somit der PGSH (Stull, 1985). Allerdings kann in dieser Arbeit kein Zusammenhang zwischen der GSH und der Bewölkung bestimmt werden (Abb. 4.14). Unter stabilen Bedingungen ( $\beta > 0$ ) wird stets eine niedrige GSH ermittelt, unabhängig davon, ob die RAS durch Wolken geflogen ist oder nicht. Dies gilt auch für die GSH unter labilen Bedingungen ( $\beta \leq 0$ ). Es gibt keinen Indiz dafür, dass durch die Wolken eine tendenziell höhere oder niedrigere GSH bestimmt wird (Abb. 4.15).

Demnach ist die Variabilität der PGSH in den Warm- oder Kaltperioden auch nicht durch Beeinflussung von Bewölkung zu erklären. Interessanterweise ist in den Morgenstunden unter labilen Bedingungen stets eine höhere GSH ermittelt worden als unter stabilen Bedingungen. Zusammengefasst ist aber kein Einfluss der Wolken auf die GSH zu beobachten.

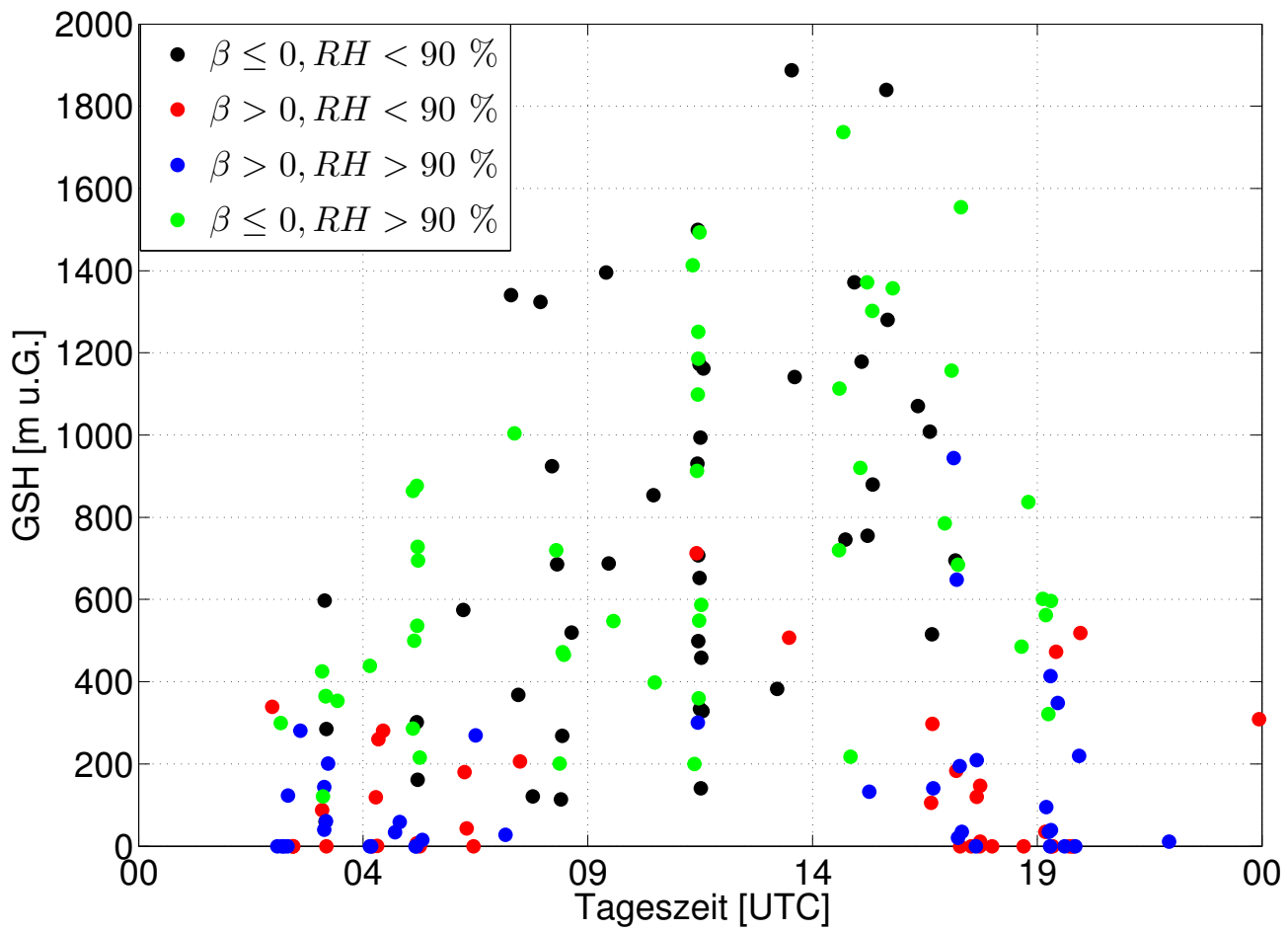


Abb. 4.14: Vergleich der GSH in Abhängigkeit der Stabilität und der maximalen relativen Feuchte bis 4 km über Grund für die gesamte Messkampagne.

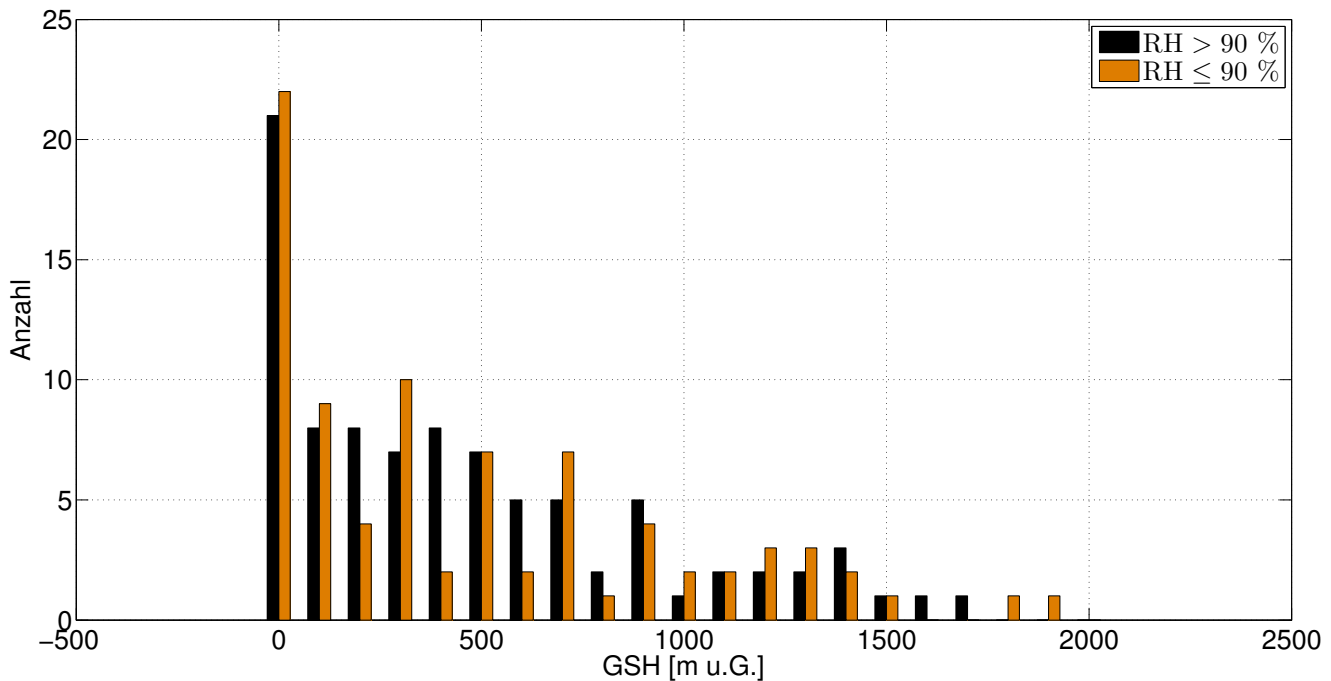
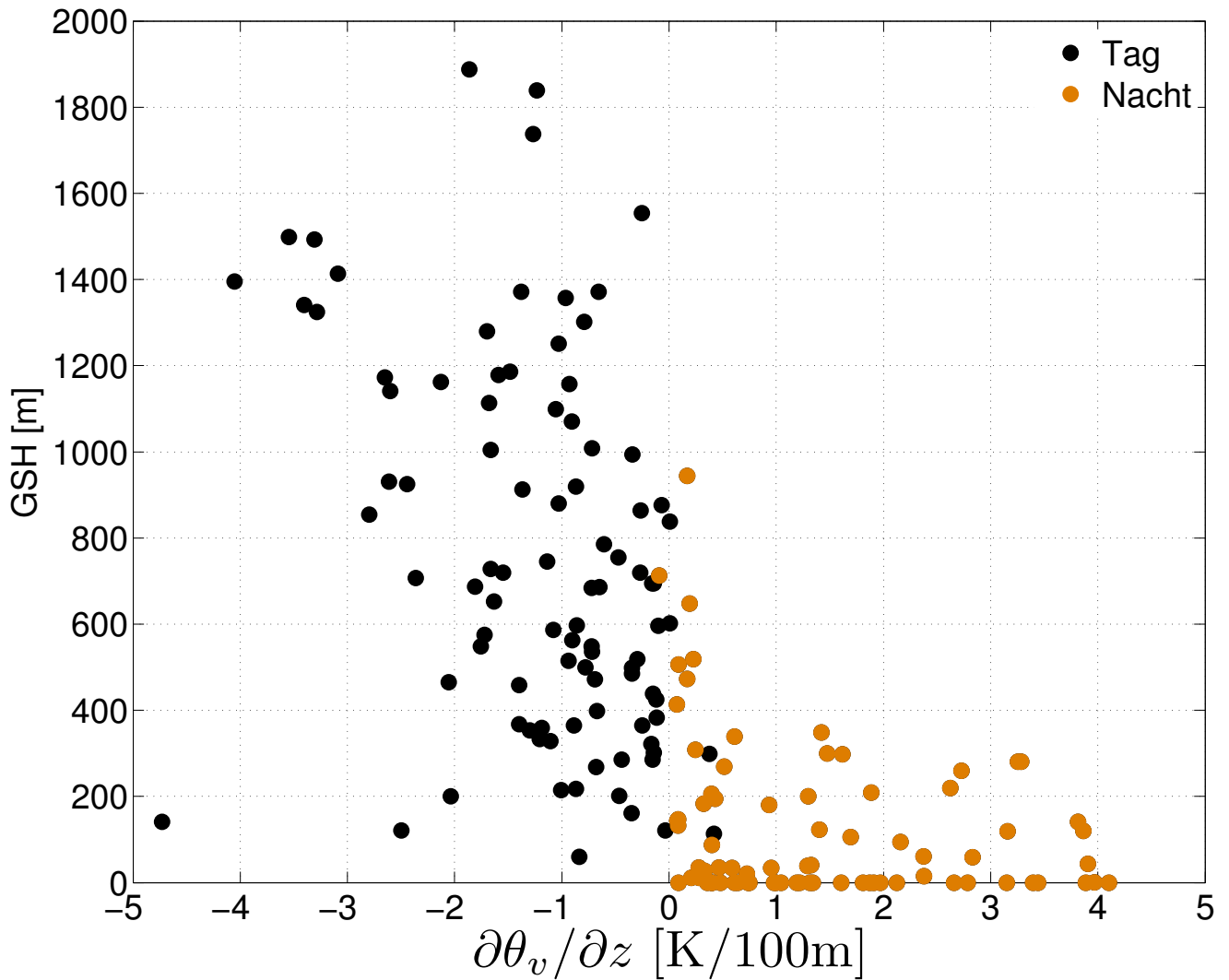


Abb. 4.15: Häufigkeitsverteilung der GSH in Abhängigkeit der Maximalfeuchte, welche repräsentativ für das Vorhandensein von Wolken ist.



**Abb. 4.16:** Zusammenhang zwischen der GSH und dem Temperaturgradienten über die ersten 100 m. Die Farben geben Tages- und Nachtwerte an.

### Einfluss der Temperatur

In diesem Unterabschnitt soll der statistische Zusammenhang zwischen der GSH und der bodennahen Temperatur untersucht werden. Der Temperaturgradient kann dabei als Vertreter für die fehlenden sensiblen Wärmeflussmessungen auf dem KF genutzt werden, da dieser auch für das Anwachsen der GSH durch Turbulenzgenerierung mit verantwortlich ist. Den Erwartungen entsprechend zeigt Abbildung 4.16, dass es einen Zusammenhang zwischen dem Temperaturgradienten (über die ersten 100 m) und der resultierenden GSH gibt. Demnach ist bei einem positiven Temperaturgradienten eine niedrige GSH zu beobachten, während bei einem negativen Temperaturgradienten eine höhere GSH bestimmt wird.

Gleichwohl ist bei erhöhten Temperaturen mit einer höheren Einstrahlung zu rechnen, und folglich ist eine größere PGSH zu erwarten (wenn Temperaturadvektion ausgeschlossen wird (Georgoulias et al., 2009)). In Abbildung 4.17 ist die Häufigkeitsverteilung der GSH in Abhängigkeit der atmosphärischen Stabilität dargestellt. Die GSH wird im Folgenden in 200m-Klassen vom Boden bis 2200 m über Grund und zusätzlich in drei Temperaturklassen ( $T \leq 10^\circ\text{C}$ ,  $10^\circ\text{C} < T \leq 20^\circ\text{C}$  und  $T > 20^\circ\text{C}$ ) unterteilt. Die Einteilung der Temperaturklassen erfolgte aufgrund der lokalen Temperaturspanne. Die Häufigkeitsverteilung der GSH unter stabilen Bedingungen in den verschiedenen Temperaturklassen ist in den Abbildungen 4.17 (a-c) präsentiert. In jeder Temperaturklasse ist in der Mehrheit der Fälle eine sehr niedrige GSH (0-200m) zu beobachten; das ist insofern zu erwarten, da fast alle stabilen Bedingungen in der Nacht beobachtet wurden (vgl. Abb. 4.3). Die mittlere Temperaturklasse beinhaltet die größte Anzahl an Werten (80%), wovon der Großteil zwischen 0-200 m (69%) liegt. In den nächsten 200 m (200-400 m) ist bereits eine

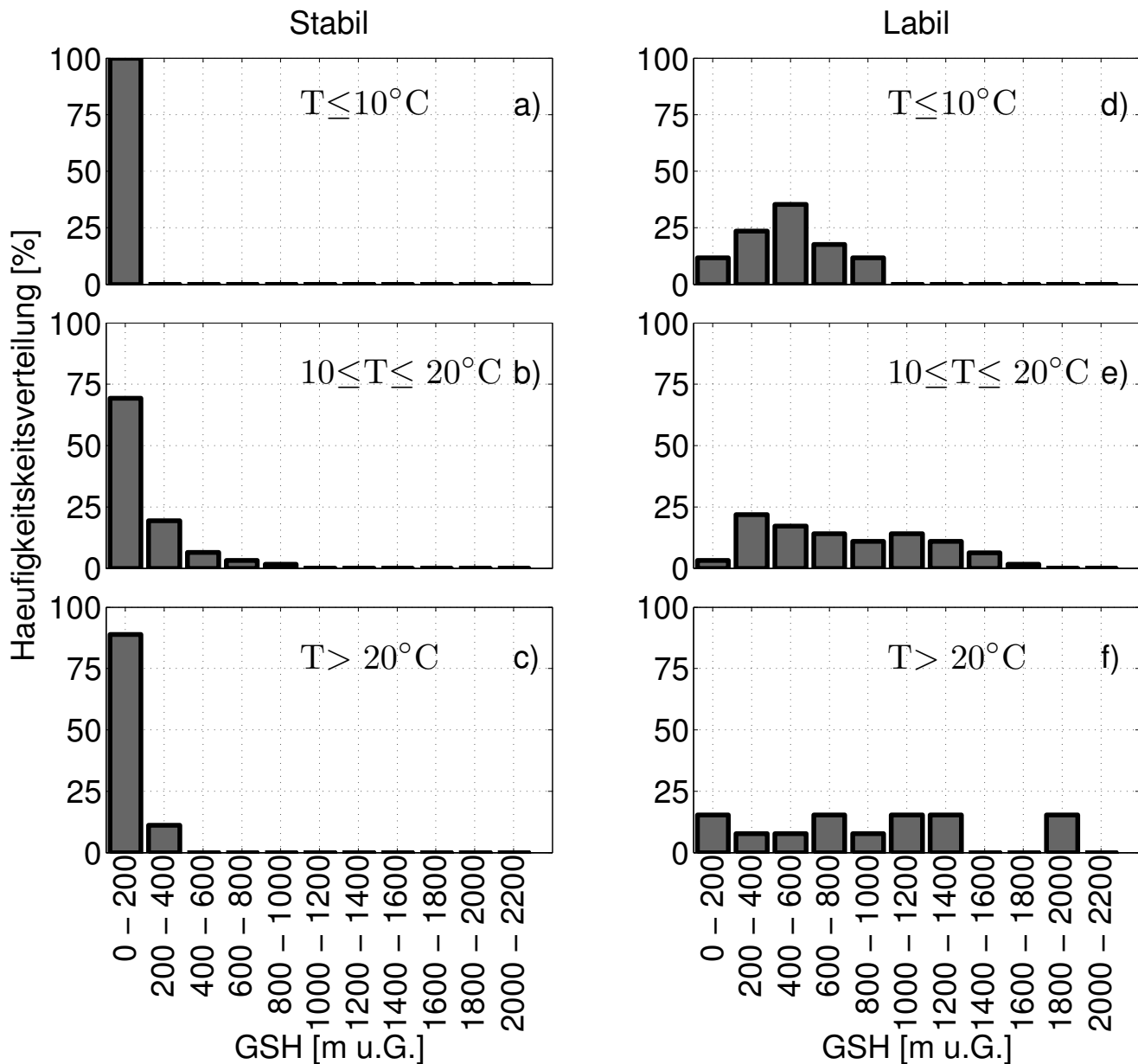


Abb. 4.17: Häufigkeitsverteilung der GSH über dem KF unter stabilen (a-c) und labilen (d-f) Bedingungen; eingeteilt in verschiedene Temperaturklassen. Die Stabilität wurde mit dem Stabilitätskoeffizienten  $\beta$  bestimmt.

deutliche Abnahme an Werten zu beobachten: Die Häufigkeit liegt hier bei 19%. Da hohe Grenzschichten in allen Temperaturklassen unter stabilen Bedingungen nur selten vorkommen, lässt sich keine klare Abhängigkeit bestimmen.

Die Häufigkeitsverteilung zu labilen Bedingungen zeigt für die erste Temperaturklasse eine breite Verteilung von 0 - 1000 m (Abb. 4.17d). Ein Wechsel zu der nächsthöheren Temperaturklasse ist einvernehmlich mit der Bestimmung von größeren Grenzschichthöhen. Dabei ist aber kein proportionaler Zusammenhang zwischen den Temperaturen und der GSH zu bestimmen. Die Häufigkeitsverteilung der GSH erreicht ihr Maximum häufig in den unteren Klassen (200 - 800 m) und verringert sich bis auf Einzelfälle in 2000 m. Bei Temperaturen von mehr als  $20^\circ\text{C}$  ist wieder eine breite Verteilung aller Höhenklassen zu beobachten. Die Ergebnisse zeigen insgesamt keinen klaren Zusammenhang zwischen der bodennahen Temperatur und der GSH. Sowohl unter stabilen als auch unter labilen Bedingungen werden sehr häufig niedrigere Grenzschichten beobachtet, wohingegen nur zu labilen Bedingungen auch hohe Grenzschichten bestimmt werden, die wiederum unabhängig von der Bodentemperatur sind.



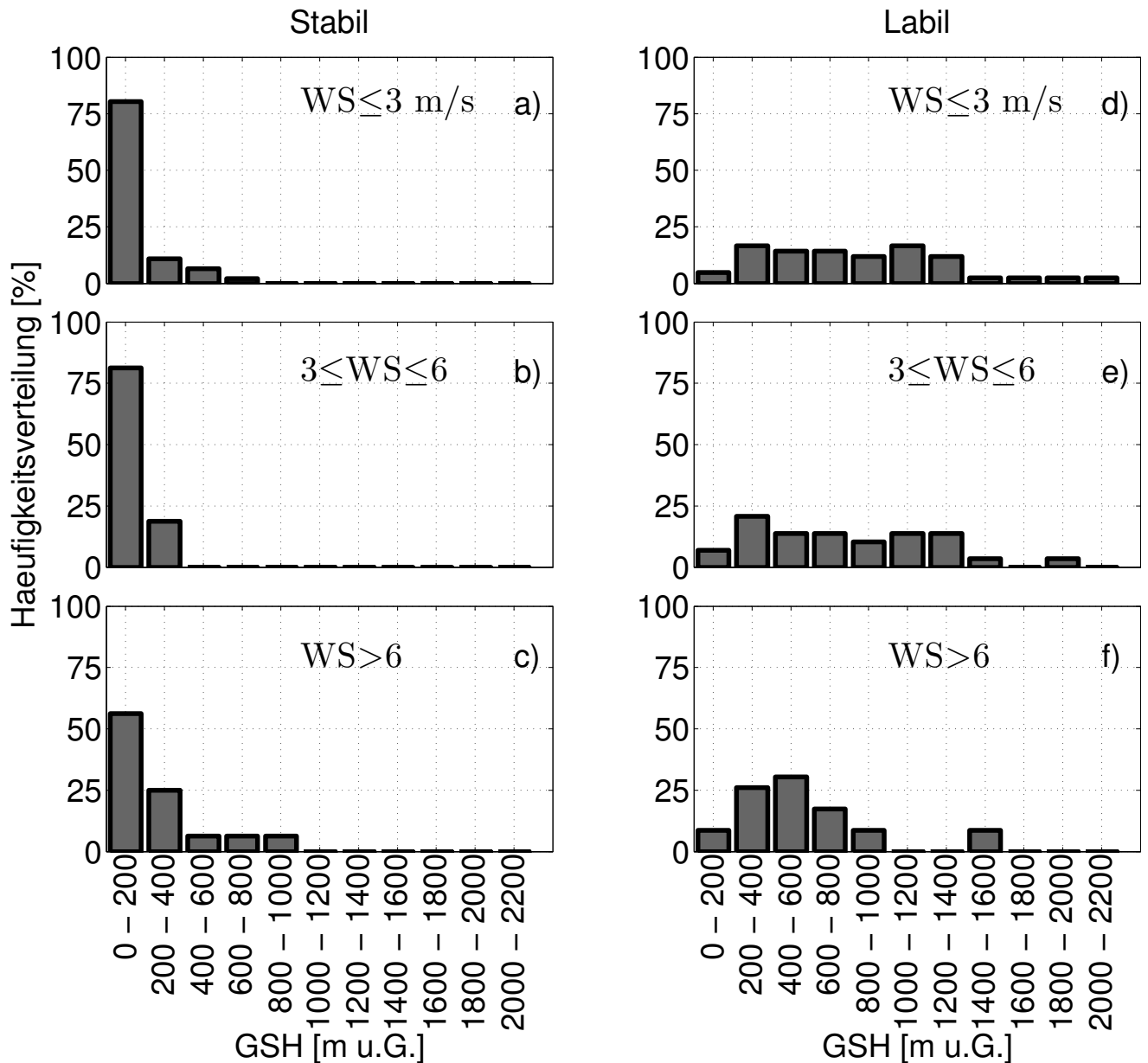


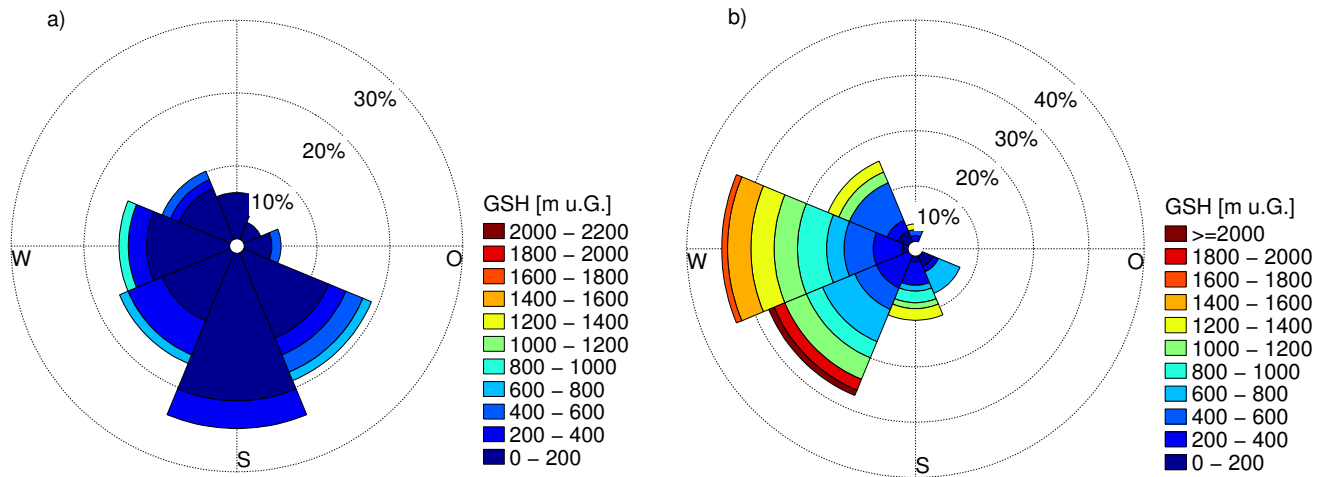
Abb. 4.18: Wie Abb. 4.17 für verschiedene Windgeschwindigkeitsklassen.

### Einfluss der 10m-Windgeschwindigkeit

Das Anwachsen der PGSH kann auch durch die Generierung dynamischer Turbulenz forciert werden (Lemone et al., 1999). Um diesen Zusammenhang zu untersuchen, wurde wie im letzten Abschnitt die GSH in Klassen zu stabilen und labilen Bedingungen eingeteilt. Die Einteilung in die verschiedenen Windklassen ( $WS \leq 3 \text{ ms}^{-1}$ ,  $3 < WS \leq 6 \text{ ms}^{-1}$ ,  $WS > 6 \text{ ms}^{-1}$ ) ist angelehnt an die Stabilitätsklassen nach Pasquill (1961), allerdings leicht modifiziert für höhere Windgeschwindigkeiten, da die Messungen auf einem Berg stattfanden.

Die Windgeschwindigkeiten basieren auf den Messungen der frei fliegenden RAS auf 840 m über NN. Bei niedrigeren Windgeschwindigkeiten  $< 3 \text{ ms}^{-1}$  werden am Tag eher instabile Bedingungen erwartet, dagegen in der Nacht stabile Bedingungen. Mit zunehmender Windgeschwindigkeit wird die Atmosphäre sowohl am Tag als auch in der Nacht neutraler geschichtet. Demnach könnten in der Nacht höhere Grenzschichten vermutet werden, wobei bereits in Abb. 4.3 gezeigt wurde, dass in der Nacht meist stabile Bedingungen ( $\beta > 0$ ) vorliegen.

In Abbildung 4.18 (a-c) ist die Häufigkeitsverteilung der GSH über die drei Windklassen dargestellt. Niedrigere Windgeschwindigkeiten ( $WS < 3 \text{ ms}^{-1}$ ) zu stabilen Bedingungen sind verbunden mit sehr niedri-



**Abb. 4.19:** Häufigkeitsverteilung der GSH über dem KF zu a) stabilen und b) labilen Bedingungen, eingeteilt in die Windrichtung. Die Stabilität wurde mit dem Stabilitätskoeffizienten  $\beta$  bestimmt.

gen Grenzschichten (Abb. 4.18 a). Die GSH ist nie höher als 400 m, wobei der Hauptanteil in der ersten Klasse (0-200 m) zu finden ist. Bei zunehmender Windgeschwindigkeit (Abb. 4.18 b und c) werden, wie zu erwarten, höhere Grenzschichten bestimmt, aber der Hauptanteil der Werte ist weiterhin in den unteren Höhenklassen zu finden (0-200 m, 69 % bzw. 77 %).

Die Häufigkeitsverteilung der GSH unter labilen Bedingungen ist relativ unabhängig von der vorherrschenden Windgeschwindigkeit (Abb. 4.18 d-f). In allen Windklassen werden hohe GSH bestimmt, aber auch genauso häufig niedrige GSH, sodass insgesamt eine breite Verteilung zu beobachten ist. Am häufigsten werden in allen Windklassen Grenzschichthöhen zwischen 200 - 800 m bestimmt.

Zusammengefasst kann aber keine klare Auswirkung der Windgeschwindigkeit auf die GSH über dem KF während der Messkampagne PARADE festgestellt werden.

### Einfluss der bodennahen Windrichtung

Neben der großskaligen Anströmung kann die Sekundärzirkulation (Berg-Tal) möglicherweise einen Einfluss auf die PGSH haben (u. a. Kossmann and Fiedler, 2000). Die GSH wird deshalb in Abhängigkeit der Windrichtung und der atmosphärischen Stabilität mit Windosen untersucht (Abb. 4.19). Die Häufigkeitsverteilung der Windrichtung ist aus dem Anteil der Grenzschichthöhenklassen zusammengesetzt. Das heißt, je häufiger eine Grenzschichthöhenklasse in einer Windrichtung gefunden wurde, desto breiter ist die Klasse.

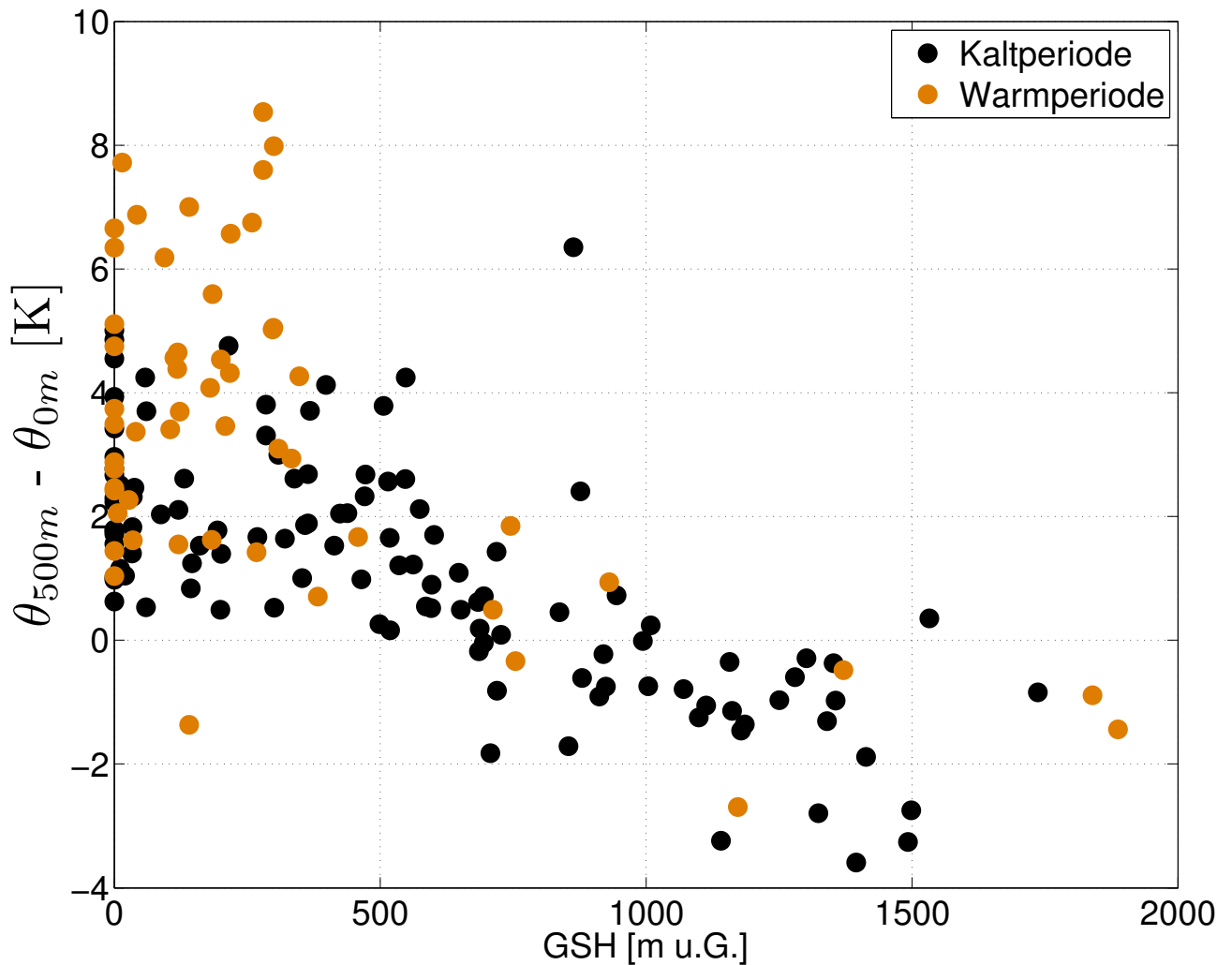
Gemäß der Hauptwindrichtung in den mittleren Breiten war auch lokal während der Messkampagne die Hauptanströmrichtung aus SW-W. Abbildung 4.19 zeigt, dass die Luftmassen mehrheitlich aus W (32%), SW (28%) und NW (17%) stammen. Eine klare Grenzschichthöhenabhängigkeit wird dabei nicht bestimmt, war aber auch nicht zu erwarten. Interessanterweise dreht der Wind unter stabilen Bedingungen (also mehrheitlich nachts) auf SW (17%), S (23%) und SO (19%). Wieder kann kein Unterschied zwischen hohen und niedrigen Grenzschichten aus den jeweiligen Windsektoren gefunden werden.

Luftmassen aus dem Süden und eine niedrige GSH könnten zusätzlich die Luftmassenzusammensetzung lokal im Rhein-Main-Gebiet mit beeinflussen. Diese Hypothese wird in Kapitel 4.6 im Zusammenhang mit den CO<sub>2</sub>-Messungen neu aufgegriffen.

### Einfluss der Großwetterlage

Aus den bisherigen Ergebnissen konnte kein Zusammenhang zwischen den lokalen Bedingungen und der GSH gefunden werden. Es liegt nahe, dass die großskalige synoptische Situation und die daraus resultierende Anströmung die GSH mitbeeinflusst haben (vgl. Abb. 1.8).

Dies ist einerseits in Abbildung 4.4 an der Diskrepanz zwischen hohen Grenzschichten in der kühleren Periode und niedrigeren Grenzschichten in der warmen Periode zu beobachten. Aus der meteorologischen Analyse der Kampagne (vgl. Tab.3.1) ist bekannt, dass während der Warmperioden über Mitteleuropa



**Abb. 4.20:** Korrelation der Temperaturdifferenz zwischen den ersten 500 m über Grund und der GSH. Warme Perioden sind orange und kalte Perioden schwarz dargestellt.

Hochdruckeinfluss herrschte, begleitet von großskaliger Subsidenz. Großflächiges Absinken von Luftmassen in Hochdruckwetterlagen verstärkt die Temperaturinversion an der Grenzschichthöhe und die Wolkenauflösung (Myers and Norris, 2013).

Dies könnte die hohen Temperaturen oberhalb der flachen GSH während der Warmperiode erklären. Andererseits kann das Grenzschichtwachstum in Warmperioden auch durch die Advektion von warmen Luftmassen aus Südeuropa über kühlere Luftmassen in der Messregion gehemmt werden. Dies deckt sich mit den Beobachtungen aus dem Radiosondenaufstieg in Abb. 4.7: Eine bodennahe Inversion mit einer Stärke von rund 10K ist zu beobachten. Damit die PGSH über den Tag anwachsen kann, muss diese bodennahe Inversion erst (i) aufgelöst, (ii) vermischt werden oder (iii) die Bodentemperatur muss weit genug ansteigen. Abbildung 4.20 zeigt, dass in der Warmperiode, in Verbindung mit einer niedrigen GSH, häufig eine hohe Temperaturdifferenz innerhalb der ersten 500 m über Grund auftritt. Dieser beobachtete Einfluss der großskaligen synoptischen Situation auf die GSH deckt sich gut mit Modellstudien (Sinclair et al., 2010). Auch hier ist eine niedrige Grenzschichthöhe in Warmsektoren zu beobachten und eine zusätzliche Dämpfung durch die Advektion warmer Luftmassen. Demnach kann sowohl die Subsidenz als auch die Advektion warmer Luftmassen die beobachtete niedrige GSH erklären. Die Kaltperioden werden häufig durch den Durchzug einer Kaltfront eingeleitet, hinter welcher es zu einem raschen Abwärtstransport von kühleren Luftmassen und zur Bildung einer Frontalinversion kommt. Die Höhe dieser Frontalinversion könnte demnach die GSH während der Kaltperiode markieren.

Zusammengefasst ist die GSH stark von der synoptischen Wetterlage während der Messkampagne PARADE beeinflusst. Abhängigkeiten von lokalen Bedingungen (Temperatur, Wind) konnten, im Gegensatz zu Georgoulias et al. (2009), nicht beobachtet werden. Welchen Einfluss die resultierende GSH auf die Spurengasmessung auf dem KF hat, wird im nächsten Abschnitt untersucht.

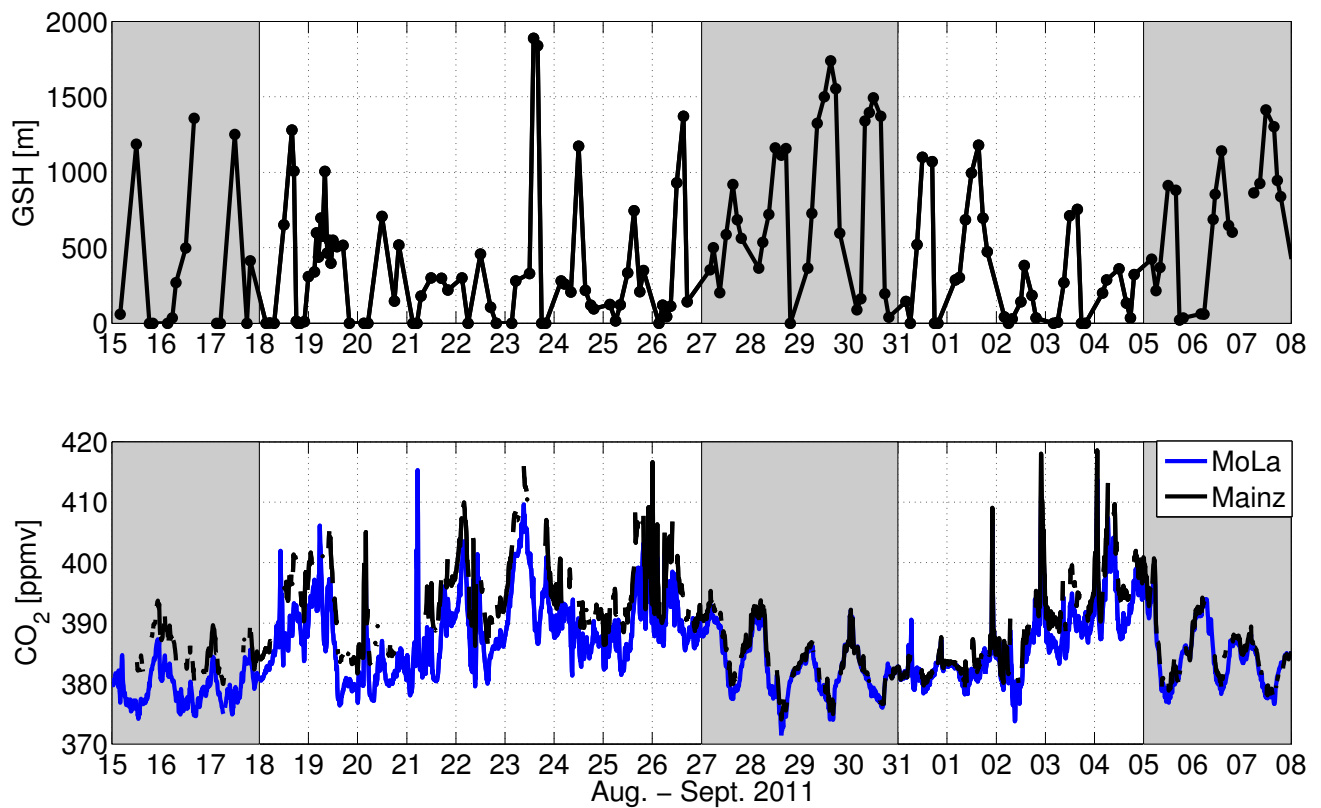
## 4.6 Lokale Effekte auf die CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnisse am Boden

Der natürliche Tagesgang von CO<sub>2</sub> in Bodennähe zeigt im Allgemeinen, abhängig von der Klimazone, tagsüber niedrige und nachts erhöhte Mischungsverhältnisse. Diese Variation beruht im Wesentlichen auf der Aktivität der Vegetation: Tagsüber entziehen die Pflanzen der Atmosphäre CO<sub>2</sub> durch die Photosynthese, nachts geben sie durch Respiration wieder CO<sub>2</sub> ab (Reiter and Kanter, 1982). Die Amplitude dieser tageszeitlichen Variationen wird neben der Jahreszeit durch meteorologische Einflüsse bestimmt. Während der Wachstumsperiode der Pflanzen in den Frühjahrs- und Sommermonaten ist die Aktivität der Vegetation über Europa besonders hoch, was in einer erhöhten Reduzierung von CO<sub>2</sub> am Tag resultiert (Levin et al., 1995; Peters et al., 2005). Innerhalb einer Bodeninversion sammelt sich dagegen in der Nacht das CO<sub>2</sub> an und kann Mischungsverhältnisse weit über dem Tagesmittelwert erreichen. Im vorangehenden Kapitel wurde erläutert, dass eine niedrige GSH während der Warmperiode beobachtet wurde. Abbildung 4.21 zeigt dazu die zeitgleichen CO<sub>2</sub>-Messungen auf dem KF. Abweichungen zwischen den beiden CO<sub>2</sub>-Zeitreihen können unter anderem an den unterschiedlichen Positionen der Lufteinlässe liegen. In einer Warmperiode mit einer geringen GSH werden hohe CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnisse von fast 420 ppmv erreicht. In den Zeitbereichen der Kaltperioden drehen sich diese Verhältnisse um. Es ist daher naheliegend, dass bei einer niedrigen GSH die CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnisse akkumulieren und somit ansteigen.

Des Weiteren zeigen sich in den Kaltperioden klare Tagesgänge im CO<sub>2</sub>, während in den Warmperioden hohe Variationen zu beobachten sind. Die täglichen CO<sub>2</sub>-Variationen hängen aber auch (1) von den lokalen meteorologischen Bedingungen, (2) Quellen und Senken, sowie (3) von der Stärke und Richtung der lokalen Zirkulationssysteme und synoptischen Anströmung oder von der Kombination beider ab (DeWekker et al., 2009; Lee et al., 2012). Dieser Zusammenhang wird auch in der Häufigkeitsverteilung der CO<sub>2</sub>-Messungen in Abhängigkeit der lokalen Windrichtung gezeigt (Abb. 4.22). Am häufigsten treten hohe CO<sub>2</sub>-Werte aus der lokalen Windrichtung von 135 bis 225° auf, und zwar nur während der Hochdruckwetterlage (Warmperiode). Während der Tiefdruckwetterlage (Kaltperiode) sind die Mischungsverhältnisse aus dieser Windrichtung deutlich niedriger. Eine lokale Quelle von CO<sub>2</sub>-reichen Luftmassen bieten die Großstädte südlich der Messregion im Rhein-Main-Gebiet. Wenn die Quellen und Senken in beiden Perioden relativ konstant sind, dann ist es wahrscheinlich, dass die CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnisse durch die unterschiedlichen GSH beeinflusst werden.

Allerdings ist dieser Effekt nicht deutlich genug zu sehen und andere Quellregionen können ebenso einen Einfluss auf das CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnis haben. Um dies zu untersuchen, wurden die mittleren CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnisse gebildet (Abb. 4.23) und auf 72-stündige Rückwärtstrajektorien integriert (Abb. 4.24). Die Rückwärtstrajektorien wurden mit FLEXTRA und ECWMF (0.5°) 500 m über dem KF gestartet. In diesen beiden Abbildungen ist deutlich zu erkennen, dass die CO<sub>2</sub>-armen Luftmassen eher aus weit entfernten westlichen bzw. nordwestlichen Regionen stammen, während die CO<sub>2</sub>-reichen Luftmassen im Süden Europas ihren Ursprung haben, bzw. lokal stagnieren. Demnach können sich die CO<sub>2</sub>-reichen Luftmassen während der Warmperiode (Hochdruckwetterlage) in vielen Regionen angereichert haben. Dies ist auch in zeitgleichen bodennahen Messungen von CO<sub>2</sub> in ganz Europa zu erkennen (<http://www.esrl.noaa.gov/gmd/>).

Die klaren CO<sub>2</sub>-Tagesgänge während der Kaltperioden werden mehrheitlich durch die westliche Anströmung geprägt. Ist keine Grenzschicht Höhenabhängigkeit zu vermuten, dann ist es möglich, dass CO<sub>2</sub>-arme Luftmassen hinter den Kaltfronten aus größeren Höhen eingemischt wurden. Dies würde auch die geringe Variabilität im CO<sub>2</sub> erklären. Aber aus aktuellen Studien ist bekannt, dass das Grenzschichtwachstum



**Abb. 4.21:** Zeitlicher Verlauf der GSH (oben) und des CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnisses (unten) gemessen auf dem KF. Lücken in der CO<sub>2</sub>-Zeitreihe aus Mainz werden durch die Messungen von MoLa (siehe Kapitel 3) ergänzend dargestellt. Die grauen Flächen markieren die Kaltperioden, weiße die Warmperioden.

sehr wohl einen Einfluss auf das horizontale und vertikale CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnis haben kann. Dabei spielt die Einmischung aus der freien Troposphäre bzw. Residualschicht eine wichtige Rolle (Vilà-Guerau de Arellano, 2004; Pino et al., 2012; Blay-Carreras et al., 2014).

Insgesamt ist die Interpretation von CO<sub>2</sub>-Messungen auf einem Berg in Verbindung mit der Passage von Fronten häufig nicht eindeutig. Je nach Messort kann die Passage einer Front für ein Ansteigen oder Absinken des CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnisses sorgen (Parazoo et al., 2008), wobei die Intensität dieser Änderung an allen Messorten unterschiedlich sein kann (Geels et al., 2004). Demnach ist es notwendig, CO<sub>2</sub>-Messungen über einen längeren Zeitraum zu erheben, um klare Zusammenhänge zwischen der PGSH, der synoptischen Situation und den lokalen CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnissen zu erschließen.

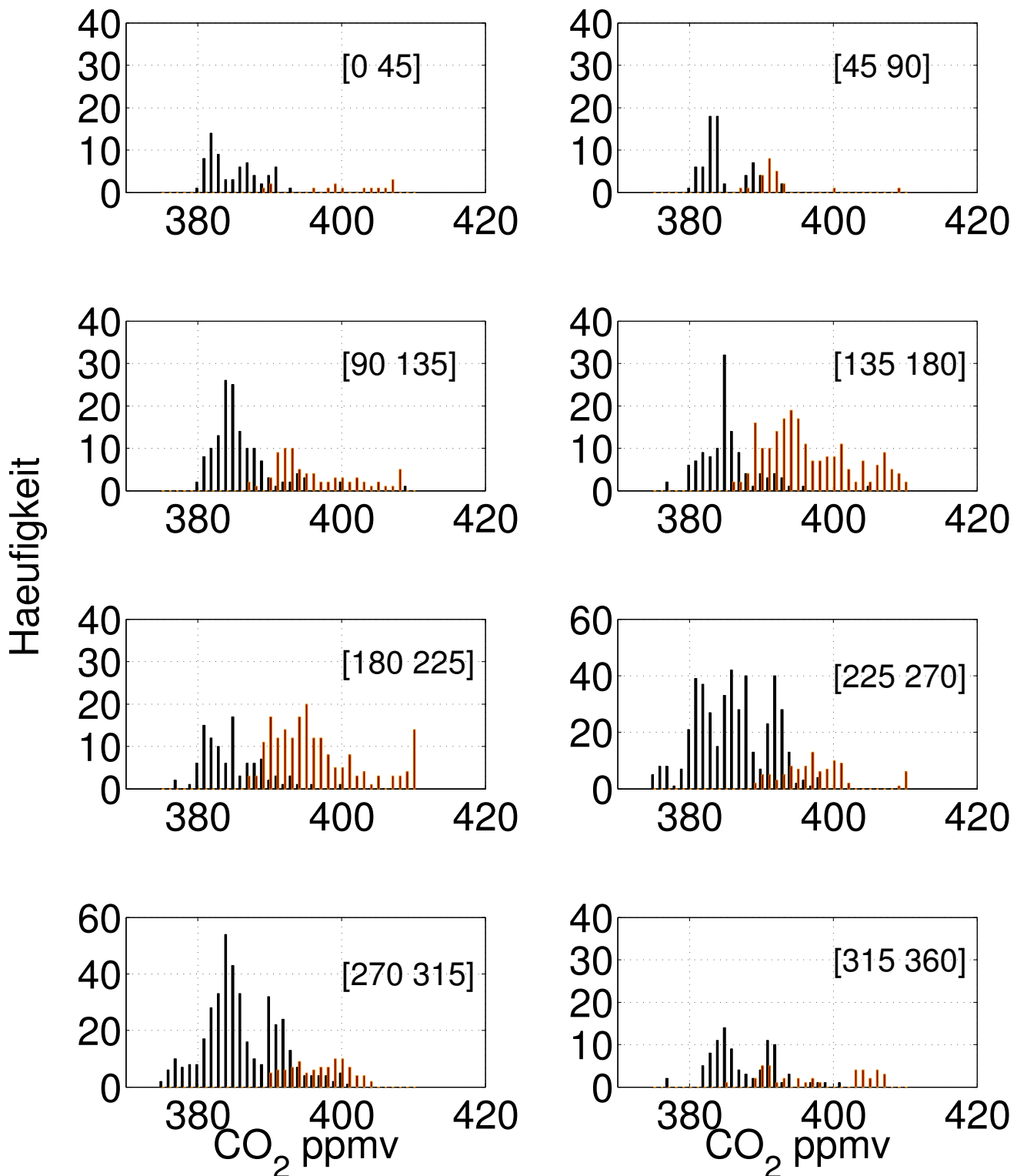


Abb. 4.22: Häufigkeitsverteilung des CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnisses in Abhängigkeit von 8 Windsektoren am Taunus Observatorium. Zusätzlich sind die Luftmassen separiert zwischen der Kaltperiode (schwarz) und Warmperiode (orange). Die unterschiedliche Skalierung ist zu beachten.

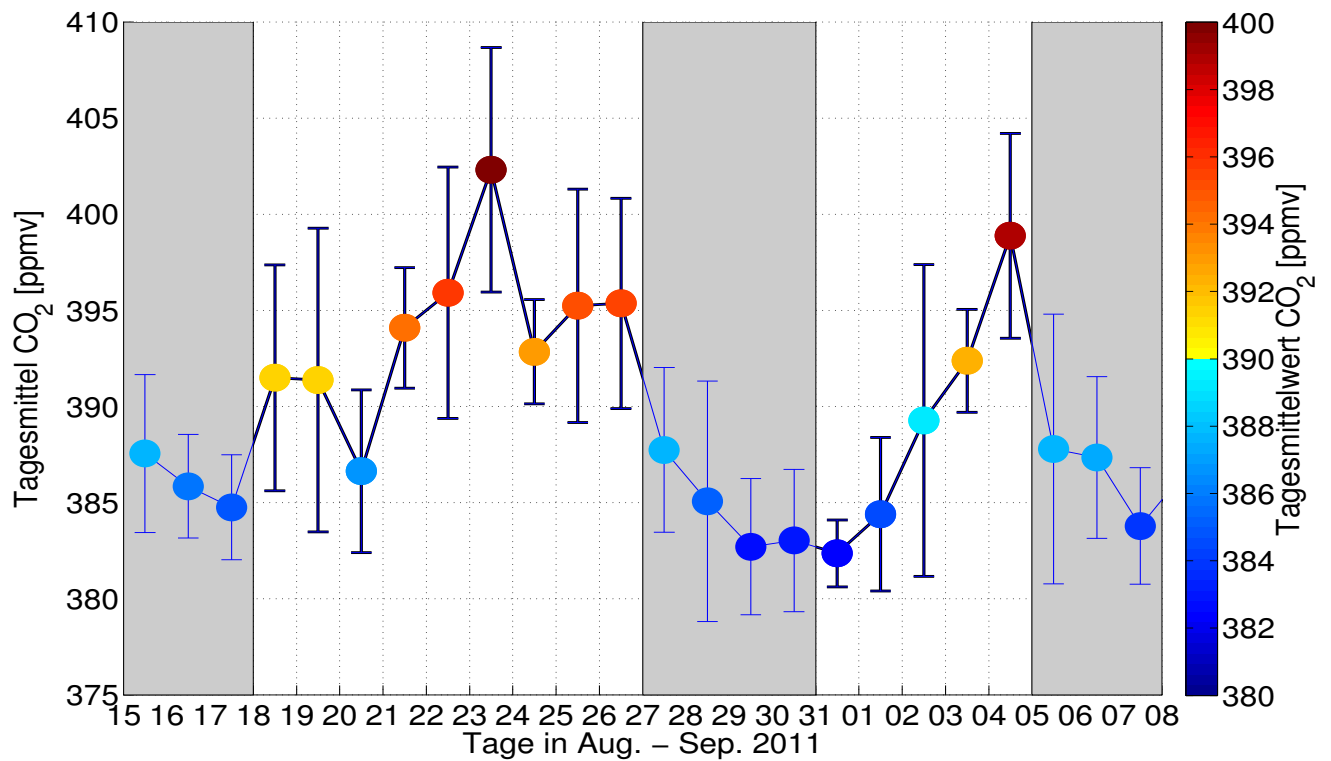


Abb. 4.23:  $\text{CO}_2$ -Tagesmittelwerte und die dazugehörige Standardabweichung während der Messkampagne PARADE auf dem KF. Die Schattierung markiert Warmluftperioden (weiß) und Kaltluftperioden (grau) (vgl. Abb. 4.4)

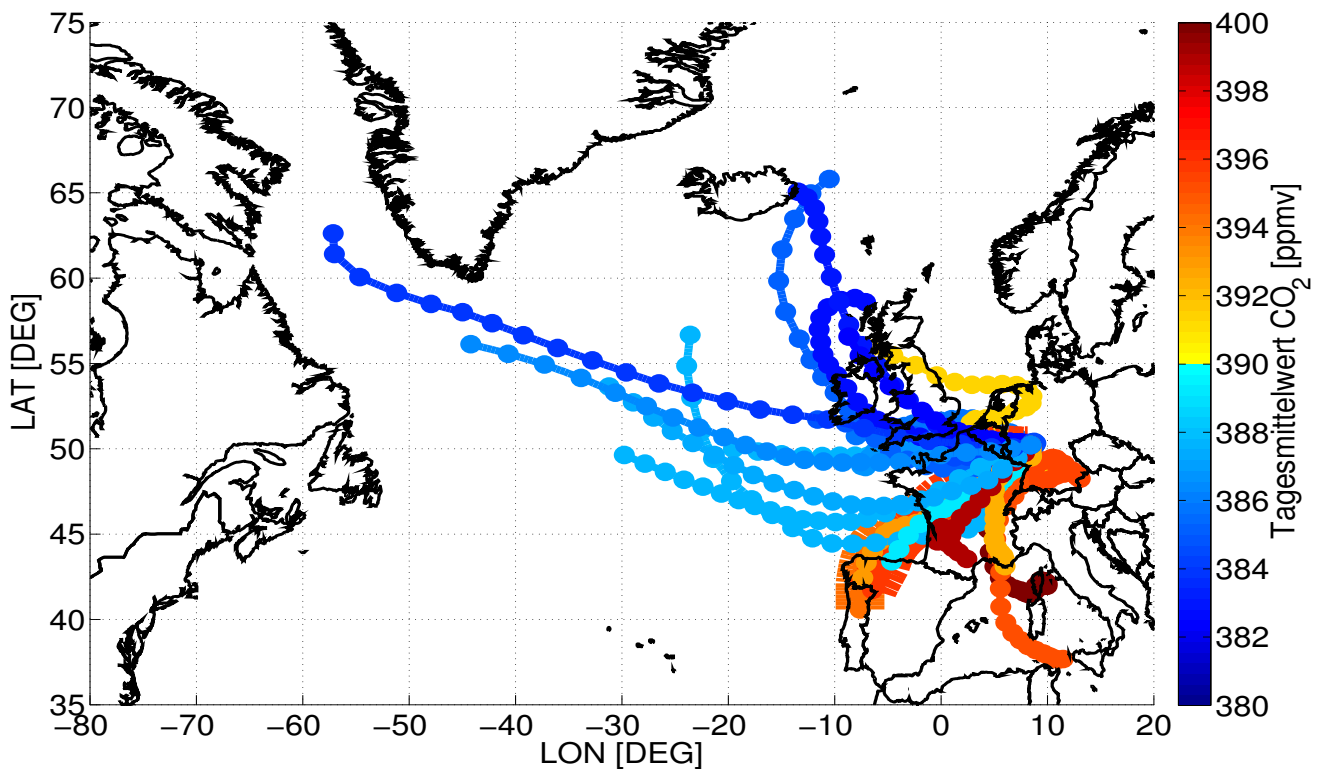


Abb. 4.24: Dargestellt sind Rückwärtstrajektorien, ausgehend vom KF in 500m Höhe für jeden Kampagnentag um 12 UTC, die mit FLEXTRA bis zu 72 Stunden zurückverfolgt wurden. Die Farben stellen die Tagesmittelwerte der  $\text{CO}_2$ -Messungen vom KF dar (vgl. Abb.4.23).

## 4.7 Zusammenfassung und Diskussion

Während der Messkampagne PARADE im Sommer 2011 am KF im Taunus wurde die PGS mit Radiosondenmessungen auf ihre Höhe und Stabilität hin untersucht. Die Radiosonden wurden jeden Tag (mit einer wechselnden Anzahl), beginnend vor Sonnenaufgang bis nach Sonnenuntergang, steigen gelassen. Zur Bestimmung der PGSH mit den meteorologischen Daten der RAS wurden verschiedene bekannte Methoden angewendet. Die Bulk-Richardson-Zahl-Methode wird dabei als Referenzmethode verwendet, da sie eine etablierte Methode für Radiosondenmessungen darstellt und sie sowohl unter stabilen als auch unter labilen Bedingungen mit denselben Kriterien genutzt werden kann. Des Weiteren konnte mit dieser Methode immer eine PGSH bestimmt werden, unabhängig vom subjektiven Schwellenwert, mit einer mittleren Abweichung von 100 m. Andere Methoden sind hingegen stärker an die atmosphärische Stabilität gebunden, weshalb mit diesen nicht immer eine PGSH ermittelt werden konnte. Die Häufigkeits- und zeitlichen Verteilungen der ermittelten Grenzsichthöhen aus allen Methoden variieren stark. Dabei hat sich gezeigt, dass alle Methoden zu verschiedenen Tageszeiten eine niedrige Übereinstimmung mit der RI<sub>B</sub>-Methode haben, wenn eine Differenz zu dieser von 100 m zugelassen wird. Schließlich wurde eine repräsentative Grenzsichthöhe (GSH) bestimmt: Nach Sichtprüfung wurden zu 85 % die Ergebnisse der RI<sub>B</sub>-Methode gewählt, in den übrigen Fällen Ergebnisse der anderen Methoden.

In bisherigen Studien werden selten Fehlergrößen für die ermittelte Grenzsichthöhe angegeben. Es kann angenommen werden, dass die Qualität der ermittelten PGSH sehr gut ist, wenn viele Methoden eine gleiche (ähnliche) PGSH bestimmen. Es hat sich bei der Qualitätsstudie gezeigt, dass sowohl für stabile als auch für labile Bedingungen in 95 % der Fälle die GSH mit mindestens drei Methoden mit einer Differenz von 125 m übereinstimmen. In der Nacht ist die Erfolgchance, eine einheitliche PGSH mit maximal 50 m Differenz zu bestimmen, mit 60 % deutlich höher als unter labilen Bedingungen mit nur 18 %. Insgesamt ist die Qualität der bestimmten GSH mit 125 m Unsicherheit gut, aber eine einzelne Methode hätte nicht ausgereicht, um die GSH zu bestimmen. Daher war auch eine Sichtprüfung der Ergebnisse aller Methoden notwendig, und dies wird auch von verschiedenen Autoren empfohlen (u. a. Seibert et al., 2000).

Es hat sich gezeigt, dass die GSH über die Messkampagne hinweg häufig einen Tagesgang abbildet mit hohen Grenzsichthöhen, wenn die Messregion unter Tiefdruckeinfluss steht und niedrige Grenzsichthöhen unter Hochdruckeinfluss. Während die lokalen Bedingungen wie Windgeschwindigkeit (mechanische Turbulenzgenerierung) und bodennahe Temperatur (als Ersatz für fehlende Wärmeflussmessungen) keinen klaren Zusammenhang zwischen diesen Größen und der GSH aufzeigten, ist es sehr wahrscheinlich, dass eher die großskalige Subsidenz in der Hochdruckwetterlage für das Absinken der Grenzsichthöhe verantwortlich ist. Des Weiteren werden durch die großskalige Anströmung warme Luftmassen aus dem Südwesten Europas zur Messregion advehiert und verstärken zusätzlich die Inversionsstärke. Dieser Einfluss der synoptischen Zirkulation auf die GSH zeigte sich auch in Modellstudien (Stull, 1988; Sinclair et al., 2010).

Der Einfluss der Grenzschicht- und Atmosphärendynamik auf dem KF lässt sich mit den lokalen CO<sub>2</sub>-Messungen nur bedingt beobachten. Luftmassen aus dem Westen mit hohen Grenzsichthöhen sind verbunden mit ausgeprägten Tagesgängen im CO<sub>2</sub> und niedrigen Mischungsverhältnissen. Hingegen sind Tage mit sehr niedrigen Grenzsichthöhen verbunden mit Luftmassen aus dem Süden, hohen CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnissen und hoher Variabilität. Insgesamt ist die Interpretation der CO<sub>2</sub>-Messungen auf dem KF in Verbindung mit dem Luftmassenwechsel durch Fronten und der ermittelten GSH häufig nicht eindeutig. Demnach ist es notwendig, CO<sub>2</sub>-Messungen über einen längeren Zeitraum vorzunehmen, um klare Zusammenhänge zwischen der PGSH, der synoptischen Situation und den lokalen CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnissen zu erschließen.



# Kapitel 5

## Evaluation der Grenzschichthöhe mit numerischen Wettervorhersagemodellen

Im Folgenden werden die vom Assimilationsverfahren unabhängigen Radiosondenaufstiege während der Messkampagne PARADE auf dem Kleinen Feldberg (KF) mit den Analysen der Regionalmodelle des Deutschen Wetterdienstes (COSMO-EU und COSMO-DE) sowie mit dem Vorhersagemodell COSMO-7 des Schweizer Wetterinstitutes verglichen, mit dem Ziel, folgende Fragestellungen zu beantworten:

- Wie gut werden die meteorologischen Variablen ( $T$ ,  $U$ ,  $V$ ,  $q_v$ ), die zur Berechnung der Bulk-Richardson-Zahl ( $RI_B$ ) notwendig sind, und die resultierende Grenzschichthöhe (PGSH) von den Wettervorhersagemodellen COSMO im Vergleich zu den Beobachtungen wiedergegeben?
- Welche Rolle spielt die Auflösung der verschiedenen COSMO-Versionen?

Die Ergebnisse werden als wichtig erachtet, um Aussagen über die Qualität der simulierten Modelldaten im Vergleich zu den gemessenen Beobachtungen zu treffen.

### 5.1 Datenaufbereitung

Die Analysen der Wettervorhersagemodelle von COSMO-EU, COSMO-7 und COSMO-DE werden mit 150 Radiosondenaufstiegen während der Messkampagne PARADE vom 15.08. bis 06.09.2011 verglichen. Die Radiosonden (RAS) haben dabei eine Höhe von mindestens 600 hPa (4 km) erreicht. Die Analysen liegen auf einem vier-dimensionalen Gitter, und zum direkten Vergleich mit den diskreten Beobachtungen der RAS wird der dem KF geographisch nächstgelegene Gitterpunkt gewählt. Um den Drift der RAS mit dem Wind zu berücksichtigen, werden die umliegenden Gitterpunkte mit dem Feldberg-Gitterpunkt räumlich gemittelt. Da die horizontale Auflösung der Modelle verschieden ist, ergibt sich die Anzahl der in Betracht gezogenen Gitterpunkte aus der gleichen räumlichen Abdeckung aller Modelle (Abb. 5.1). Das heißt, COSMO-7 und COSMO-EU verwenden neun und COSMO-DE 25 Gitterpunkte. Zusätzlich werden für COSMO-DE neun Gitterpunkte verwendet, auch wenn die räumliche Abdeckung dann kleiner ist. Anders als die RAS stehen die Analysen zu jeder vollen Stunde zur Verfügung. Der nächstliegende Analysezeitpunkt zum Radiosondenaufstieg wird gewählt, um die Messdaten mit den Analysen zu vergleichen. Aus den so räumlich gemittelten Modellvariablen wird zu jedem Zeitschritt die Bulk-Richardson-Zahl mit der Gleichung 3.1 berechnet. Äquivalent zu den Radiosondenmessungen wird die PGSH mit der  $RI_B$ -Methode (vgl. Kapitel 3), mit einem Schwellenwert von  $RI_C = 0.38$ , bestimmt.

Mögliche Diskrepanzen zwischen der  $PGSH_{RAS}$  und  $PGSH_{Modelle}$  sind wegen der  $RI_B$ -Methode an die zugrunde liegenden meteorologischen Variablen Temperatur ( $T$ ), spezifische Feuchte ( $q_v$ ) und Windkomponenten ( $u, v$ ) geknüpft. Um die Variablen aus den Analysen und Beobachtungen direkt miteinan-

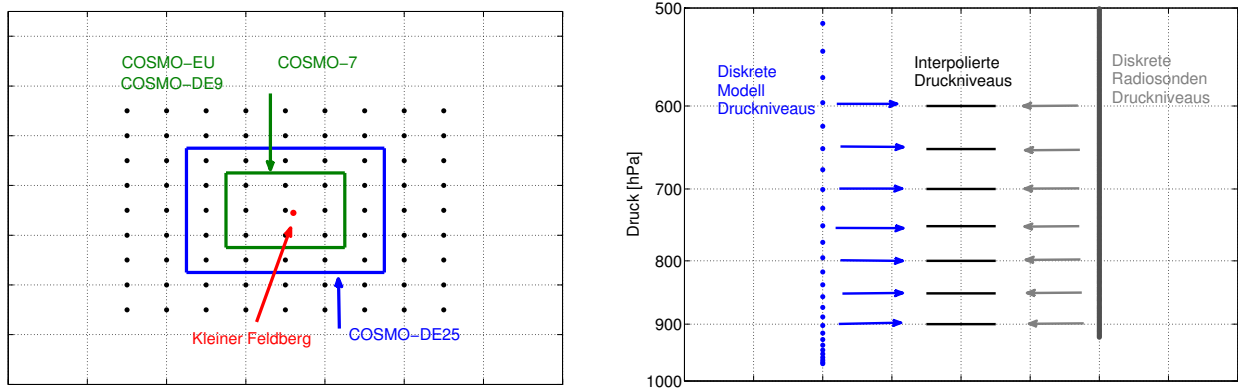


Abb. 5.1: Schematische Darstellung der Datenaufbereitung zum direkten Vergleich der Modelldaten mit den Beobachtungen aus den Radiosonden.

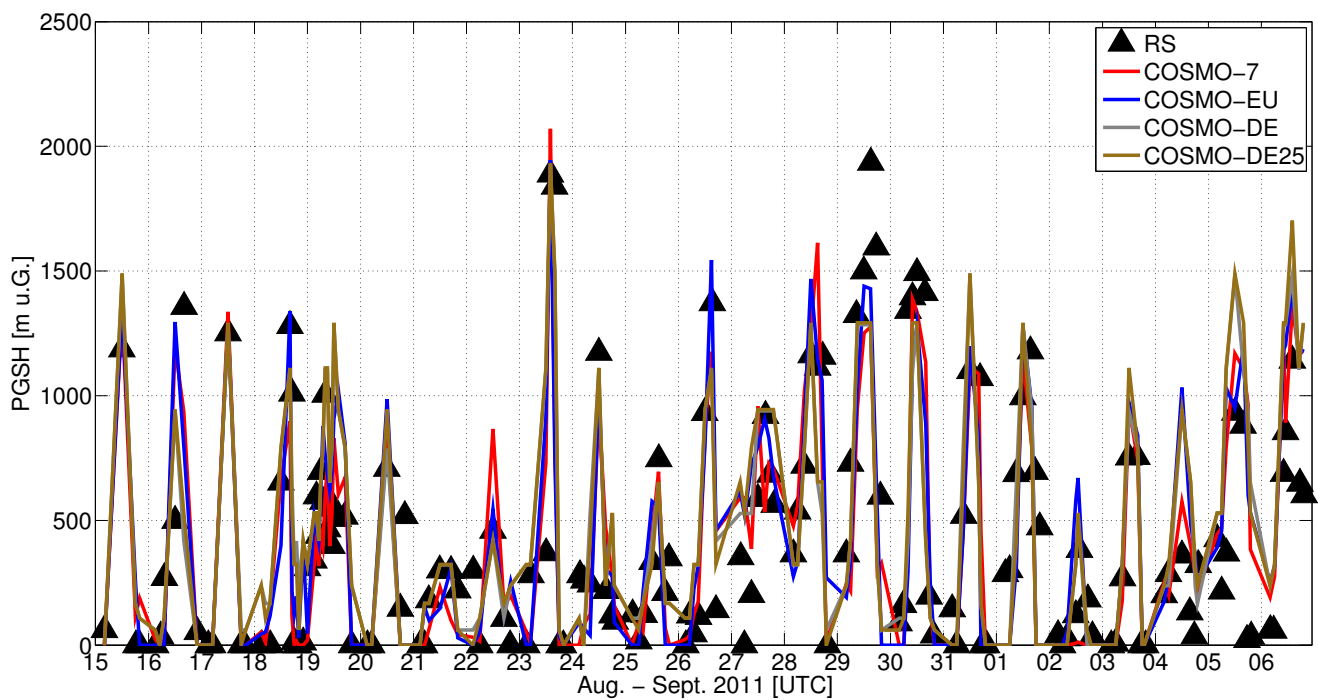
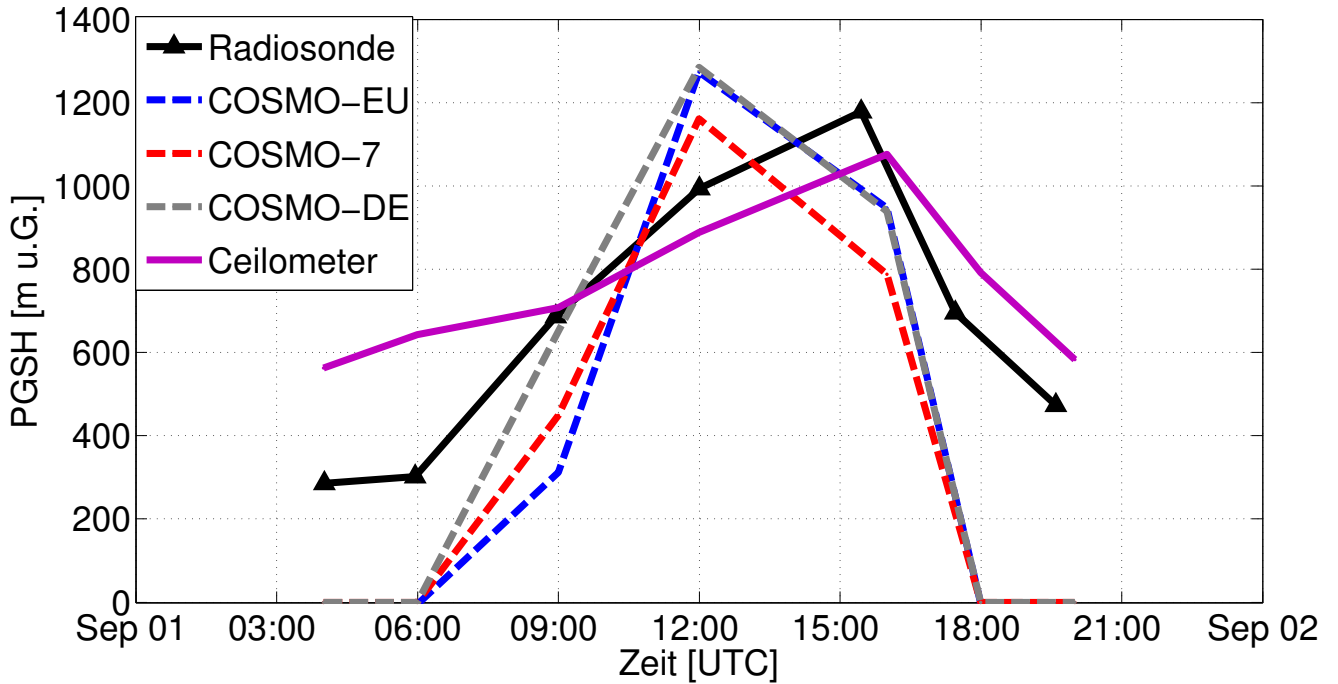


Abb. 5.2: Zeitreihen der Grenzschichthöhe (PGSH, über Grund) für Radiosonden (Dreiecke), COSMO-7 (rot), COSMO-EU (blau), COSMO-DE (grau), COSMO-DE25 (braun) während der Messkampagne PARADE.

der vergleichen zu können, sollten die Daten auf gleichen Höhengniveaus liegen. Dazu werden sowohl die gemessenen Daten als auch die räumlich gemittelten Modellgrößen auf die Druckschichten von 600 bis 900 hPa in 50-hPa-Abständen linear interpoliert. In der weiteren Analyse ist zu beachten, dass die Beobachtungen auf dem 900-hPa-Niveau möglicherweise stärker durch Wechselwirkung mit dem Erdboden (u. a. Reibung) beeinflusst werden, während sich die Modelldaten bereits einige Hundert Meter über der Modelloberfläche befinden.

## 5.2 Vergleich der Grenzschichthöhe

Abbildung 5.2 zeigt die Zeitreihen der Grenzschichthöhen aus den Beobachtungen und den Modellen. Es ist deutlich zu erkennen, dass jedes Modell in der Lage ist, den zeitlichen Verlauf der PGSH für den KF relativ gut mit der  $RI_B$ -Methode wiederzugeben. Hohe Grenzschichten werden zu Beginn, in der



**Abb. 5.3:** Zeitreihen der PGSH für Radiosonden (Dreiecke), COSMO-7 (rot), COSMO-EU (blau), COSMO-DE (grau), Ceilometer (violett) für den 01.09.2011.

Mitte und zum Ende der Messkampagne bestimmt, niedrige Grenzschichten zwischen diesen Zeiträumen. Bereits im vorangegangenen Kapitel wurde diese Variation der Grenzschichthöhe diskutiert und es wurde herausgefunden, dass die großskalige synoptische Situation die PGSH maßgeblich beeinflusst.

Allerdings zeigen sich beim genaueren Betrachten der einzelnen Tagesgänge doch größere Unterschiede, wie exemplarisch anhand des Fallbeispiels während der Hochdruckwetterlage am 01.09.2011 dargestellt ist (Abb. 5.3). Als weiteren Vergleichswert wird die PGSH aus den Ceilometermessungen dargestellt. Am Morgen (bis 6 UTC) und am Abend (ab 18 UTC) werden die Grenzschichthöhen von allen Modellen direkt am Boden bestimmt und unterschätzen die  $PGSH_{RAS}$  mit ca. 300 m. Am Tag kehren sich diese Verhältnisse um: Die PGSH wird von allen Modellen leicht überschätzt (etwa 200 m), während die beiden Beobachtungsmethoden sehr ähnliche Grenzschichthöhen aufweisen (rund 100 m Differenz). Die Abweichung zwischen den Grenzschichthöhen aus den Messdaten der Radiosonden und denen des Ceilometers am Nachmittag lassen sich möglicherweise mit flachen Kumuluswolken erklären, die einen Einfluss auf die Messwerte der Radiosonden haben können (vgl. Abb. 4.6), wohingegen die Wolken aus den Ceilometerdaten gefiltert wurden.

Um die Differenzen von  $PGSH_{RAS}$  und  $PGSH_{Modelle}$  für den gesamten Zeitraum genauer zu quantifizieren, werden ein normierter systematischer Fehler ( $\Delta_{norm}$ ) und eine normierte Standardabweichung ( $\sigma_{norm}$ ) von den Mittelwerten mit den Gleichungen 5.1 und 5.2 berechnet.

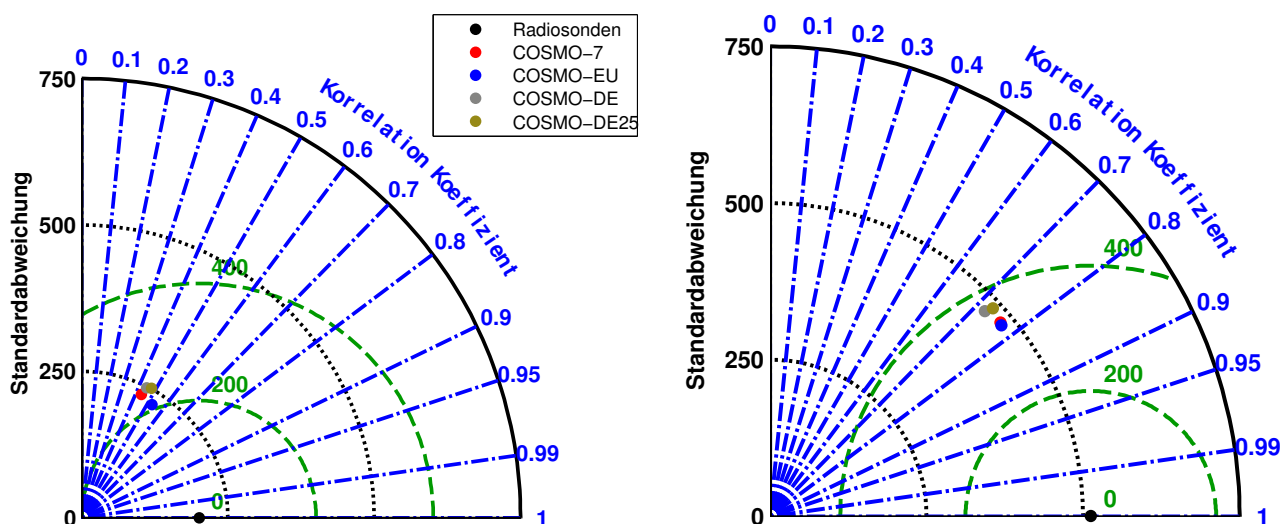
$$\Delta_{norm} = \langle PGSH_{Modell}(i) - PGSH_{RAS}(i) \rangle / \langle PGSH_{RAS} \rangle \quad (5.1)$$

$$\sigma_{norm} = \sigma((PGSH_{Modell}(i) - PGSH_{RAS}(i))) / \langle PGSH_{RAS} \rangle \quad (5.2)$$

Als Normierungsfaktor dient dazu der Mittelwert aller Grenzschichthöhen aus den Beobachtungen ( $\langle PGSH_{RS} \rangle$ ). Tabelle 5.1 zeigt, dass COSMO-7 und COSMO-EU einen geringeren  $\Delta_{norm}$  als das höher aufgelöste COSMO-DE haben. Die Abweichungen betragen lediglich 2% für COSMO-EU und bis zu 12% für COSMO-DE. Die normierte Standardabweichung des Mittelwerts variiert bei allen Modellen um die 25 bis 33%. Diese Abweichungen zwischen Modell und Beobachtung waren zu erwarten, sind aber deutlich geringer als die Vergleiche von Baars et al. (2008) und Gerbig et al. (2008) mit jeweils

	COSMO-7	COSMO-EU	COSMO-DE	COSMO-DE25
<b>Alle (# 160)</b>				
$\Delta_{norm}$	-6 %	2 %	11 %	12 %
$\sigma_{norm}$	33 %	30 %	25 %	26 %
<b>Tag (# 100)</b>				
$\Delta_{norm}$	4 %	5 %	9 %	10 %
$\sigma_{norm}$	43 %	42 %	37 %	32 %
<b>Nacht (# 60)</b>				
$\Delta_{norm}$	-18 %	-12 %	22 %	20 %
$\sigma_{norm}$	20 %	33 %	37 %	35 %

**Tab. 5.1:** Übersicht über den normierten systematischen Fehler  $\Delta_{norm}$  und normierte Standardabweichung  $\sigma_{norm}$  zwischen der PGSH aus den Radiosonden und der PGSH aus den Modellen, für alle Werte und aufgeteilt auf Tag- und Nachtbedingungen.

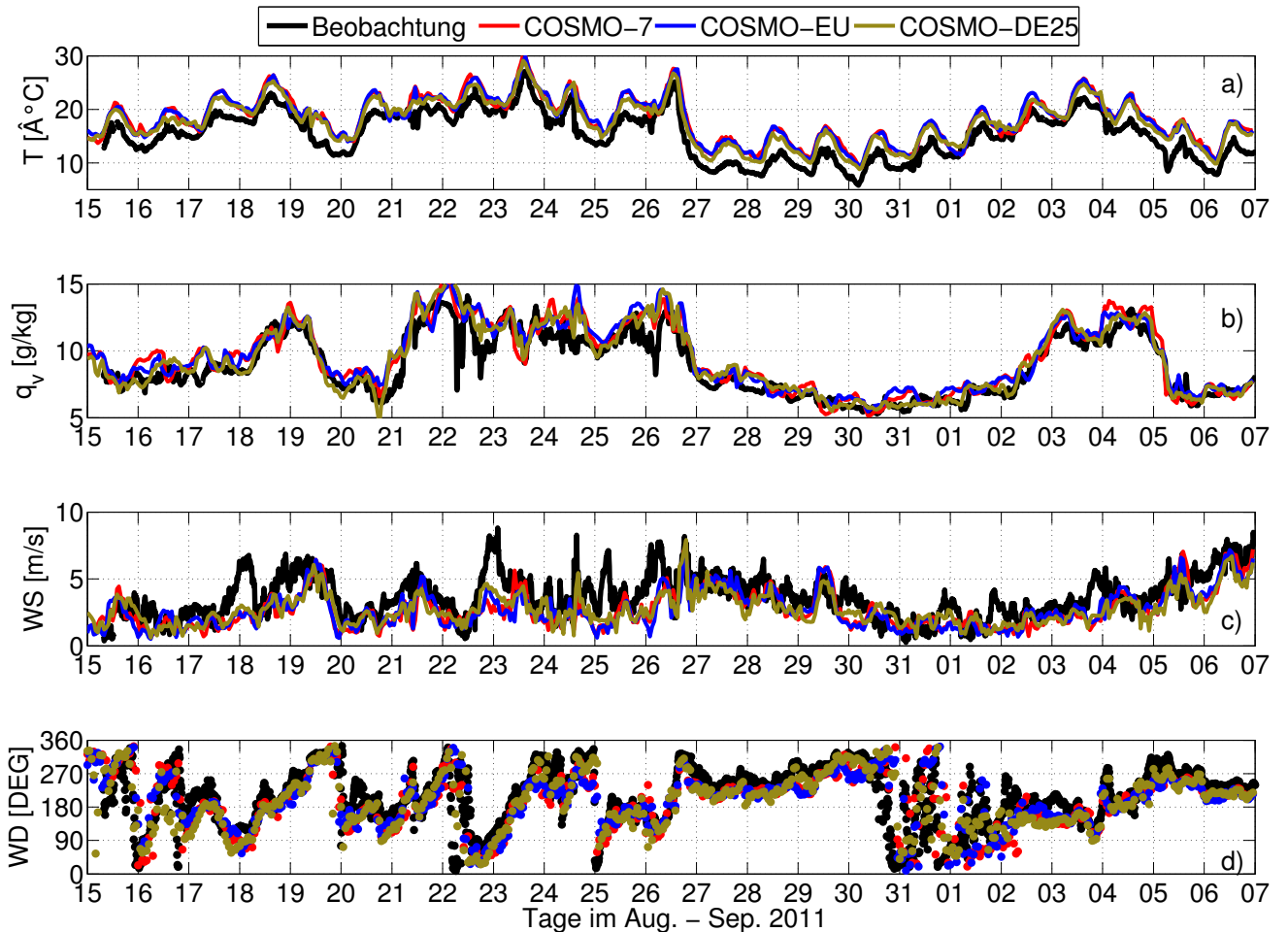


**Abb. 5.4:** Taylordiagramm zum statistischen Vergleich der PGSH aus den Radiosonden und den numerischen Vorhersagemodellen COSMO-7, COSMO-EU und COSMO-DE: (links) am Tag (rechts) in der Nacht.

einer Abweichung von 20 %. Allerdings basieren diese Studien auf Vergleichen von Radiosonden mit den Analysen des ECMWF-Modells (Gerbig et al., 2008) oder auf Vergleichen zwischen LIDAR-Messungen und den COSMO-EU-Analysen. In beiden Studien wurde ebenfalls die RI<sub>B</sub>-Methode zur Bestimmung der PGSH verwendet.

Die Höhe der konvektiven PGS am Tag ist häufig einfacher zu bestimmen als die Höhe der stabilen nächtlichen Grenzschicht, insbesondere über orographisch gegliedertem Gelände (persönliche Korrespondenz, B. Fay (DWD)). Dies zeigt sich auch an den deutlich geringen  $\Delta_{norm}$  von 4 bis 10 % für die Tageswerte mit leicht höheren  $\sigma_{norm}$  von 32 bis 43 %. Die Nachtwerte liegen im Vergleich dazu mit 12 bis 22 % deutlich hinter den Tageswerten, wobei die  $\sigma_{norm}$  mit 20 bis 37 % leicht geringer ist. Dass die Standardabweichung der mittleren PGSH in der Nacht höher ist als am Tag, ist mit der Tatsache relativ einfach zu erklären, dass eine hohe Abweichung von mehreren Metern bei einer sehr flachen PGS schnell einen hohen  $\Delta_{norm}$  zur Folge hat.

Weitere Maße zur Bestimmung der Differenzen zwischen den beiden Datensätzen sind der Korrelationskoeffizient ( $r$ ), die Wurzel des zentrierten mittleren quadratischen Fehlers ( $\Phi$ ) und die Standardabweichung der Mittelwerte ( $\sigma$ ), die im Anhang weiter erläutert sind. Zur Darstellung dieser Maße eignet sich ein Taylordiagramm (Abb. 5.4). Am Tag liegen die Korrelationen von  $PGSH_{RS}$  und  $PGSH_{Modell}$  für alle COSMO-Versionen bei  $r = 0.7 - 0.8$ ,  $\sigma$  variiert in allen Datensätzen um rund 500 m. Die Differenz von



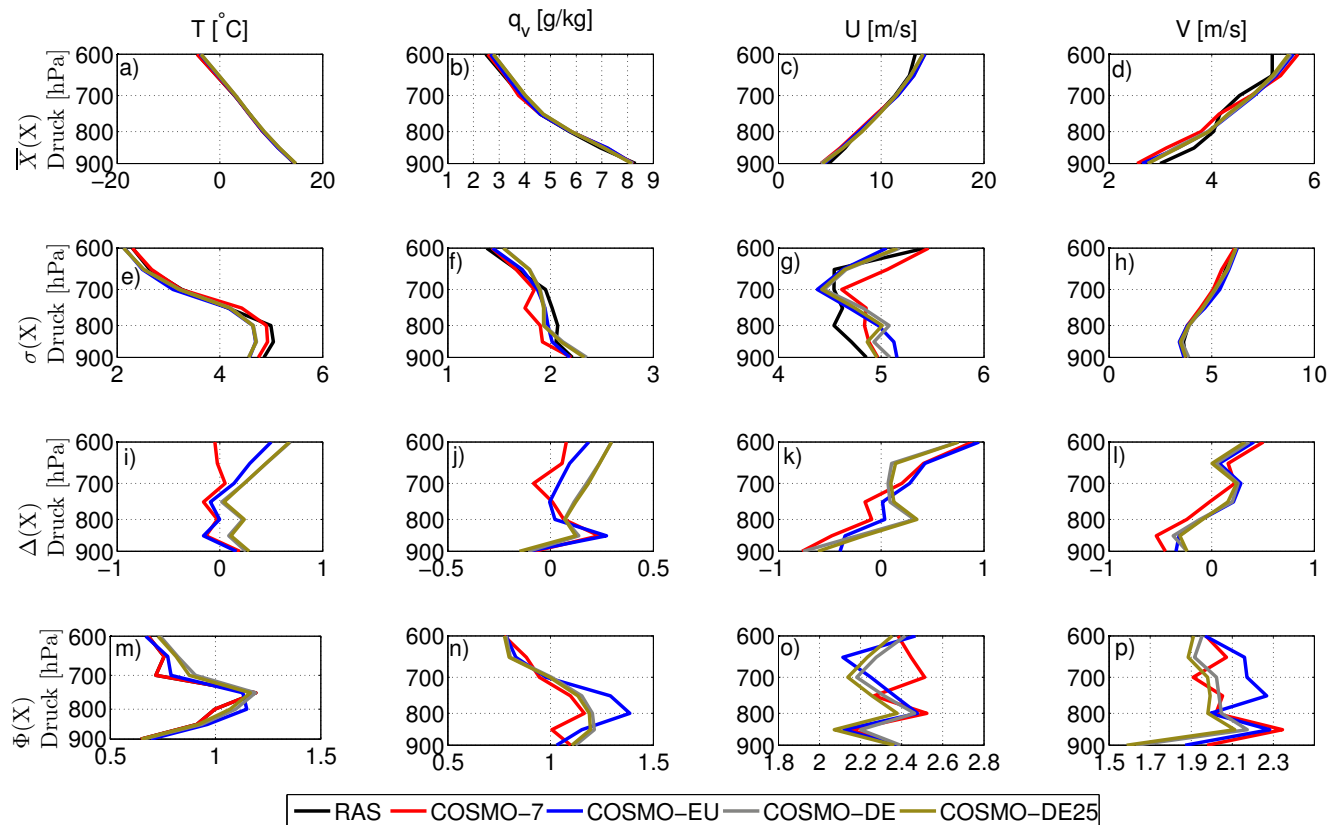
**Abb. 5.5:** Beobachtungen (schwarz) in 10m Höhe über Grund von a) Temperatur, b) spezifischer Feuchte, c) Windgeschwindigkeit ( $WS$ ) und d) Windrichtung ( $WD$ ) während der Messkampagne PARADE. Zum Vergleich die gemittelten und interpolierten Werte für die Modelle COSMO-7 (rot), COSMO-EU (blau) und COSMO-DE (braun, Mittelwert über 25 Gitterpunkte) auf der ersten Modellschicht (10 m über Grund).

$\Phi$  liegt bei rund 350 m. Deutlich erkennbar ist erneut, dass COSMO-7 und COSMO-EU bessere Übereinstimmungen zu den Beobachtungen liefern als COSMO-DE. In der Nacht dagegen verringern sich die  $\sigma$  (250 m),  $\Phi$  (220 m) und auch  $r = 0.4 - 0.5$  leicht.

Inwiefern die Differenzen zwischen den Modellen und den Beobachtungen durch Unterschiede in den meteorologischen Variablen zu klären sind, wird im nächsten Unterkapitel untersucht.

### 5.3 Vergleich der meteorologischen Variablen

Im vorherigen Abschnitt wurde gezeigt, dass die niedriger aufgelösten Modelle (COSMO-7, COSMO-EU) die PGSH am KF besser repräsentieren als das höher aufgelöste COSMO-DE-Modell. Um zu untersuchen, ob dies an den meteorologischen Variablen (Temperatur ( $T$ ), spezifische Feuchte ( $q_v$ ), Windgeschwindigkeit ( $WS$ ) und Windrichtung ( $WD$ )) liegt, werden zum einen die Zeitreihen auf dem ersten Modellniveau (10 m über Grund); (Abb. 5.5) und zum anderen eine zeitliche Mittlung der Vertikalprofile aus den Modellen mit den RAS-Messungen verglichen (Abb. 5.6). Der allgemeine Verlauf aller Variablen wird von den Modellen weitestgehend gut wiedergegeben. Dies zeigt sich sowohl in allen Zeitreihen am Boden (Abb. 5.5), als auch in den zeitlich gemittelten Vertikalprofilen (Abb. 5.6 (a) bis (d)) und in den Korrelationskoeffizienten  $r = 0.77 - 0.99$  aller Variablen auf allen Vertikalschichten (Tab. 5.2). Im Folgenden werden nun die Unterschiede in den einzelnen Variablen näher diskutiert.



**Abb. 5.6:** Beobachtungen aus den Radiosonden und Modelldaten von COSMO-7, COSMO-EU, COSMO-DE wurden auf ein einheitliches Vertikalgitter interpoliert und folgende Parameter wurden berechnet: (oben) mittlere Vertikalprofile, (zweite Reihe) Standardabweichung, (dritte Reihe) systematische Abweichung und (unten) die Wurzel des zentrierten mittleren quadratischen Fehlers  $\Phi$  für die Temperatur (a, e, i, m), spezifische Feuchte (b, f, j, n), den zonalen Wind (c, g, k, o) und meridionalen Wind (d, h, l, p).

### Temperatur

Die Abweichung der 10m-Temperatur zwischen Beobachtung und den Modellen kann auf die unterschiedlichen Höhen der Topographie zwischen dem gewählten Modell und der realen Welt zurückgeführt werden. Die Differenz zur realen Höhe des KF beträgt im Mittel rund 425 m für alle Modelle. Damit liegt die mittlere 10m-Temperatur auf dem KF bei 14.82°C und in den Modellen zwischen 18.07°C bis 18.21°C. Die Differenz von rund 3.4°C bei 425 m Höhenunterschied ist vereinbar mit der Temperaturabnahme der trockenadiabatischen Atmosphäre (1°C/100 m) und der US-Standardatmosphäre (0.65°C/100 m).

Die vertikale Temperaturverteilung wird am erfolgreichsten von COSMO-7 bestimmt, zu sehen an  $\Delta$  und  $\sigma$ . Die beiden DWD-Modelle zeigen hier sehr unterschiedliche Eigenschaften. Das COSMO-DE-Modell ist durchweg zu warm und hat eine maximale Temperaturabweichung in 600 hPa mit rund 0.6°C. Die Temperatur zwischen COSMO-EU und COSMO-7 ist bis zu einer Höhe von 700 hPa kaum zu unterscheiden, ab 600 hPa ist die Temperatur in COSMO-EU jedoch zu warm. Außerdem ist in allen Modellen  $\Phi$  in 800 bis 750 hPa deutlich erhöht im Vergleich zu den darüber und darunter liegenden Schichten. Es ist davon auszugehen, dass diese Variabilität durch Bewölkung entsteht, da in dieser Höhe häufig die PGSH (Änderung des Temperaturgradienten) und das Kondensationsniveau zu finden sind. Als Konsequenz könnte somit am Tag ein schwächer ausgeprägter Temperaturgradient zu einer höheren Temperaturvariabilität im Vergleich zu den Beobachtungen führen und deshalb auch einen Einfluss auf die PGSH haben.

### Feuchte

Auch in der Zeitreihe und den zeitlich gemittelten Vertikalprofilen von  $q_v$  sind nur geringe Unterschiede in den Beobachtungen und den simulierten Amplituden der Feuchten zu erkennen. Differenzen zwischen Modell und Beobachtungen könnten durch lokale Effekte wie Nebel oder Niederschlag entstehen, die nicht in dem Maße von den Modellen simuliert werden konnten. Der systematische Fehler ( $\Delta$ ) ist in allen Schichten nie größer als 0.4 gkg<sup>-1</sup>. Es ist jedoch deutlich zu erkennen, dass COSMO-DE im zeitlichen Mittel höhere Feuchten simuliert als die beiden niedriger aufgelösten Modelle. In allen Modellen ist  $\sigma$

$P$	COSMO-7				COSMO-EU			
	$T$	$q_v$	$U$	$V$	$T$	$q_v$	$U$	$V$
600	0.96	0.85	0.90	0.95	0.96	0.85	0.89	0.95
650	0.96	0.86	0.88	0.93	0.96	0.88	0.89	0.93
700	0.98	0.88	0.85	0.93	0.97	0.87	0.87	0.92
750	0.96	0.84	0.89	0.90	0.96	0.79	0.87	0.88
800	0.98	0.83	0.86	0.86	0.97	0.77	0.87	0.87
850	0.98	0.87	0.90	0.78	0.98	0.84	0.91	0.79
900	0.99	0.88	0.88	0.86	0.99	0.89	0.89	0.87

$P$	COSMO-DE				COSMO-DE25			
	$T$	$q_v$	$U$	$V$	$T$	$q_v$	$U$	$V$
600	0.95	0.86	0.90	0.95	0.95	0.86	0.90	0.95
650	0.95	0.90	0.88	0.94	0.95	0.90	0.88	0.95
700	0.96	0.86	0.88	0.93	0.96	0.87	0.89	0.93
750	0.96	0.83	0.88	0.90	0.96	0.84	0.88	0.90
800	0.98	0.82	0.87	0.86	0.98	0.83	0.88	0.87
850	0.98	0.83	0.90	0.82	0.98	0.84	0.91	0.82
900	0.99	0.88	0.89	0.91	0.99	0.88	0.88	0.91

**Tab. 5.2:** Korrelationskoeffizienten zwischen den Analysen der Wettervorhersagemodelle und den Radiosonden für verschiedene Variablen auf verschiedenen Druckleveln.

geringer als in den Beobachtungen, und dies spiegelt sich auch in den schwächeren Korrelationskoeffizienten wider (Tab. 5.2). Der geringste Korrelationskoeffizient wird dabei von COSMO-EU mit  $r = 0.77$  in 800 hPa bestimmt. In dieser Schicht ist auch  $\Phi$  im COSMO-EU am höchsten gegenüber den anderen Modellen. Alle diese Abweichungen können, ebenso wie die Temperatur, einen Einfluss auf die Grenzschichthöhenbestimmung haben. Der Modellvergleich mit Beobachtungen liegt nur für einen Ort vor, aber hier ist qualitativ festzustellen, dass sowohl die Temperatur als auch die Feuchte gut von Modellen wiedergegeben werden. Neben den thermodynamischen Größen ist die Berücksichtigung der Scherung zur Berechnung der Bulk-Richardson-Zahl notwendig. Dazu hilft der Vergleich der Windfelder.

## Wind

Die vierwöchige Messkampagne war überwiegend geprägt von einer SW-W-Anströmung. Der Verlauf am Boden und die vertikale Verteilung werden zum größten Teil gut wiedergegeben. Eindrucksvoll ist dabei die Analyse der Windrichtung in 10 m Höhe über Grund (vgl. Abb. 5.5). Häufig ist allerdings eine zu niedrige Windgeschwindigkeit in den Modellen bei einer Windrichtung aus Ost bis Süd über einen längeren Zeitraum zu beobachten. Diese Abweichung kann aber nicht an der räumlichen Mittlung liegen, da Windspitzen aus anderen Windrichtungen sehr gut wiedergegeben werden. Des Weiteren treten diese Differenzen häufig nachts bzw. am frühen Morgen auf. Wahrscheinlich spielen neben den Hang- und Talwinden auch Starkwindbänder (engl. low-level-jet) in Bodennähe oder auch Kanalisierungseffekte zwischen den umliegenden Bergen eine Rolle, die von den Modellen nicht gut erfasst werden.

Unterschiede sind auch in der Standardabweichung vom zonalen Wind ( $U$ ) zu beobachten. Alle Modelle zeigen hier eine größere Variabilität in den unteren Schichten als die RAS-Messungen. Auch die zeitlich gemittelte Windgeschwindigkeit ist geringfügig niedriger ( $-0.5 \text{ ms}^{-1}$ ). Seit der Einführung des Runge-Kutta-Integrationschemas im Jahr 2008 in den COSMO-Modellen wird über Hügeln und in mittelhohen Gebirgen häufig eine negative systematische Abweichung mit zu niedrigen Windgeschwindigkeiten simuliert. Dies ist durch die verringerte Orographie in allen COSMO-Modellen zu erklären (Baldauf et al., 2009a) und zeigt sich auch in den Korrelationskoeffizienten. In den unteren Schichten sind diese kleiner, was wahrscheinlich durch die Bodenreibung in der realen Atmosphäre zu erklären ist. Oberhalb von 750 hPa spielt die Bodenreibung auch in den Beobachtungen keine Rolle mehr und führt zu einer potentiell besseren Übereinstimmung im Wind. Erstmals zeigt hier das COSMO-DE-Modell die besten Übereinstimmungen. Unterschiede zwischen neun bzw. 25 Gitterpunkten sind dabei nicht markant.

Zusammengefasst zeigen alle Modelle eine gute Übereinstimmung mit den Beobachtungen bzgl. des Winds, mit Schwächen in 800 bis 750 hPa. Wie bereits angeführt, liegt in dieser Höhe häufig das Kondensationsniveau der Wolken, das zur Erklärung herangezogen werden kann. Weitere Untersuchungen wurden nur mit allen Daten in der Nacht (56 Profile), am Tag (96) sowie für die Perioden vom 15.08. bis 26.08.2011 (80) und 27.08. bis 06.09.2011 (70) durchgeführt. Damit konnten aber keine weiteren aussagekräftigen Unterschiede erfasst werden.

## 5.4 Zusammenfassung und Diskussion

Die Analysen von COSMO-EU, COSMO-DE und COSMO-7 wurden gegen die Beobachtungen am Boden und in der Luft am KF während der Messkampagne PARADE im Sommer 2011 überprüft. Dazu wurden 150 Vertikalprofile der Temperatur, spezifischen Feuchte und der Windkomponenten zu unterschiedlichen Tageszeiten gewählt, um die Analysen der Modelle für den Messort zu evaluieren. Es stellte sich heraus, dass sowohl die Bodenmessungen (10 m über Grund) von allen Modellen im zeitlichen Verlauf als auch die Amplituden gut wiedergegeben wurden. Lediglich die Windgeschwindigkeit wurde häufig in der Nacht von allen Modellen zu niedrig simuliert, wenn der Wind aus Süden bis Osten wehte. Dabei spielte die unterschiedliche horizontale Auflösung der Modelle keine große Rolle. Die Vertikalverteilung der verschiedenen Variablen zeigte auch keine großen Überraschungen. Sowohl die Temperatur als auch die spezifische Feuchte wurden sehr gut reproduziert und zeigen einen geringen systematischen Fehler und eine gleiche Standardabweichung des Mittelwerts. Maximale Abweichungen beider Variablen zeigt die Berechnung der Wurzel des zentrierten mittleren quadratischen Fehlers ( $\Phi$ ) in rund 800 hPa, wo auch häufig der stärkste Temperatur- und Feuchtegradient, die Basis von Kumuluswolken sowie die PGSH beobachtet wurden. Die systematische Abweichung ( $\Delta$ ) der Windgeschwindigkeit über alle Vertikalschichten ist nie größer als  $1 \text{ ms}^{-1}$ , und auch die Ursache für die negative systematische Abweichung in Bodennähe ist bekannt (Baldauf et al., 2009a).

Die aus den Modelldaten bestimmte PGSH zeigt auch gute Übereinstimmungen mit den Beobachtungen im zeitlichen Verlauf. Dabei sind die Höhen der geringer aufgelösten Modelle (COSMO-7, COSMO-EU) in der konvektiven PGS deutlich besser als erwartet und zeigen sich durch die geringe Abweichung von -2 bis 6% im normierten systematischen Fehler ( $\Delta_{norm}$ ). In der Nacht steigt  $\Delta_{norm}$  auf bis zu -18% an, dennoch ist dieser Wert noch deutlich unter den Werten von 50%, die Gerbig et al. (2008) fanden. Interessanterweise zeigt das höher aufgelöste COSMO-DE-Modell schlechtere Übereinstimmungen im Vergleich zu den geringer aufgelösten Modellen. Der Grund dafür ist ohne genauere Sensitivitätsstudien nicht zu erklären. Möglich sind Unterschiede in den Modellparametrisierungen, z.B. haben die höher aufgelösten Modelle keine Konvektionsparametrisierungen und die mögliche Bewölkung könnte ein Grund für die Unterschiede sein. Auch die Vertikalauflösung ist in allen drei Modellen unterschiedlich. COSMO-7 hat 60 Schichten, COSMO-DE 50 und COSMO-EU 40 (Tab. 2.4). Da angesichts der verschiedenen Anzahl der Schicht von COSMO-EU und COSMO-7 insgesamt um 20 Level die Ergebnisse beider Modelle nur marginal voneinander abweichen, ist es unwahrscheinlich, dass die vertikale Auflösung der Grund für die Diskrepanz ist. Auch die horizontale Auflösung spielt keine Rolle, da die Mittlung der Daten von COSMO-DE über neun bzw. 25 Gitterpunkte in den Vergleichen zu den Beobachtungen kaum Unterschiede zeigte.

Lokale Effekte wie Wolken haben einen Einfluss auf die Beobachtungen und können zu einer Differenz der Grenzschichthöhen führen. Der Vergleich der PGSH nur unter wolkenfreien Bedingungen zeigte, dass COSMO-7 und COSMO-EU besser mit diesen Beobachtungen übereinstimmen als COSMO-DE. Erschwerend kommt hinzu, dass die Mehrzahl der Grenzschichthöhen kurz vor bzw. nach Sonnenaufgang (-untergang) ermittelt wurden. Zu diesen Tageszeiten ist häufig der Übergang von der stabilen Schichtung am Morgen zur turbulenten PGS (und umgekehrt) eine zusätzliche Störgröße (Hennemuth and Lammert, 2006). Ob das Auftreten von Wolken im Modell vergleichbar zur realen Bewölkung ist, konnte in dieser Arbeit nicht untersucht werden.

Zusammengefasst hat diese Studie gezeigt, dass die Analysen der verschiedenen COSMO-Versionen gut mit den Beobachtungen vom KF übereinstimmen. Es wäre allerdings wünschenswert, wenn die PGSH in mehreren Regionen des Modellgebiets verglichen werden könnte.



## Kapitel 6

# Transport von Grenzschichtluftmassen in die freie Troposphäre

Unter der Zielvorgabe der Messkampagne PARADE, den Einfluss der biogenen und anthropogenen Emissionen auf Partikel und Radikale näher zu untersuchen, wurde der Messort auf dem Kleinen Feldberg (KF) gewählt. Der KF und die umgebenden Gebirge sind weitgehend von lokalen anthropogenen Quellen entkoppelt, und dementsprechend wird die Messstation am Taunus Observatorium als Hintergrundstation angesehen (Quass et al., 2009). Allerdings konnte bereits in Kapitel 4 demonstriert werden, dass die bodengebundenen CO<sub>2</sub>-Messungen unter bestimmten meteorologischen Bedingungen (Grenzschichthöhe und Anströmrichtung) verschieden stark beeinflusst werden können. Um einen Eindruck von der horizontalen und vertikalen Verteilung am Messort unter diesen Bedingungen zu erlangen, wurden Profile von verschiedenen Spurengasen und Partikelanzahlkonzentrationen mit einem Flugzeug gesammelt. Denn gerade in Regionen mit hügeligem Terrain können sogenannte „Handover“-Prozesse stattfinden, die Luftmassen aus der planetaren Grenzschicht (PGS) in die freie Troposphäre (FT) transportieren und umgekehrt (McKendry and Lundgren, 2000). Dementsprechend können verschiedene Transportprozesse einen Einfluss auf die lokalen Punktmessungen auf dem KF haben, die auch noch streng von der synoptischen Großwetterlage geprägt sind. Unter dieser Voraussetzung sollen mit den Flugzeugmessungen folgende Fragen beantwortet werden:

- Was bestimmt die Zusammensetzung der Grenzschicht über dem KF bei PARADE?
- Welche Rolle spielen Ferntransport und Austausch zwischen der PGS und FT?

### 6.1 Flugzeugmessungen

#### Flugstrategie

Für die Untersuchung der Vertikalverteilung der Spurengase wurden die Daten von fünf Messflügen zu je zwei bis drei Stunden mit einem Kleinflugzeug an drei Tagen während der Messkampagne gesammelt. Das Flugzeug wurde mit Instrumenten zur Messung von CO<sub>2</sub>, CO, O<sub>3</sub> und Partikelanzahlkonzentrationen in verschiedenen Größenbereichen ausgestattet (siehe Kapitel 2). Das typische Flugmuster (Abb. 6.1) der Messflüge startete in Mainz. Westlich vom KF über dem Taunusgebirge begann ein spiralförmiger Aufstieg bis auf 3000 m. Der Transferflug zum KF wurde auf diesem Höhenniveau fortgesetzt. Spiralförmig wurden über dem KF Sinkflüge geflogen bis knapp unter die Kuppe des Berges. Im weiteren Verlauf kam es zu maximal zwei weiteren spiralförmigen Sinkflügen über dem KF mit den jeweiligen Transfer- und Steigflügen östlich oder westlich des KFs. Der Rückflug wurde meist auf direktem Weg nach Mainz mit der Landung abgeschlossen. Einzig der Flug 20110902b durfte südlich um Frankfurt nach Mainz zurückfliegen und somit stromaufwärts vom KF die Luftmassen in der PGS vermessen. Mit diesem Flugmuster konnten insgesamt 13 Vertikalprofile bis zu 3 km Höhe (über NN) über dem KF von verschiedenen Spurengasen und meteorologischen Variablen gewonnen werden.

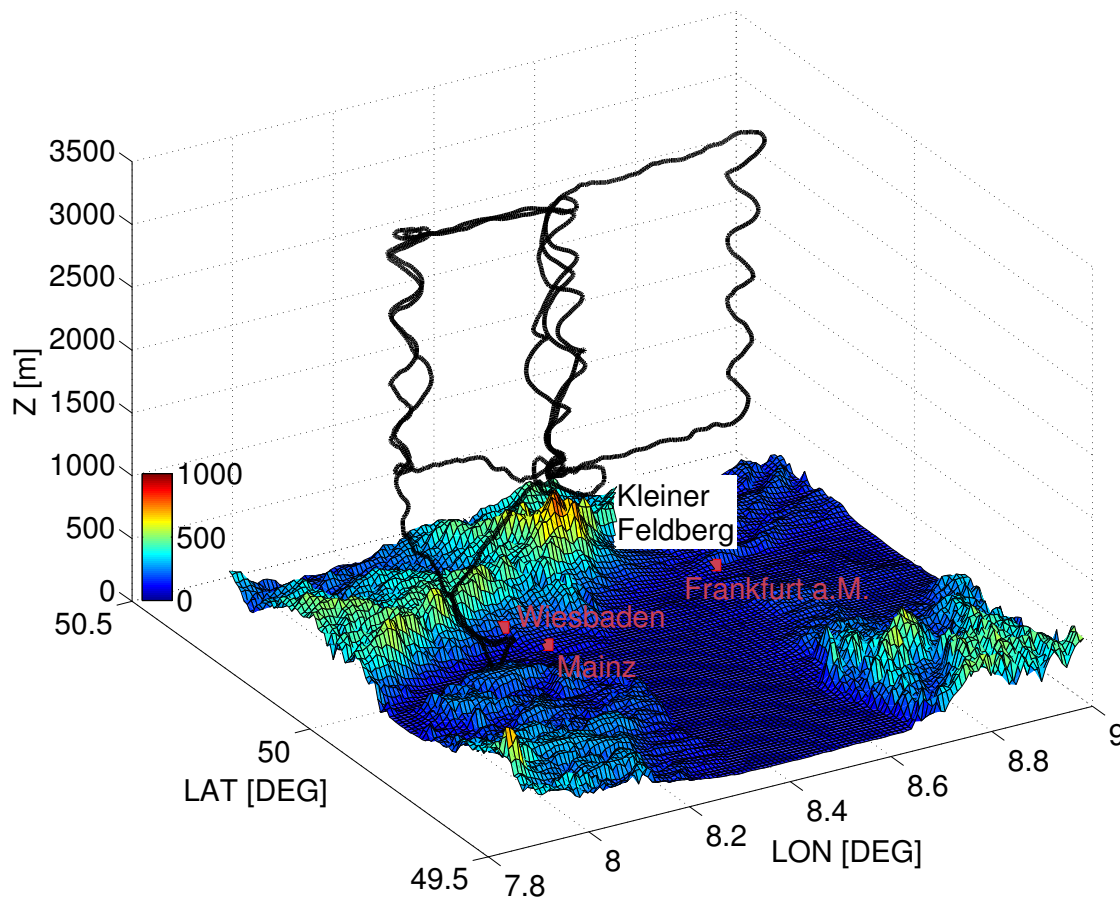


Abb. 6.1: Das Flugprofil am 06.09.2011 als ein Beispiel für das typische Flugprofil während der Messkampagne PARADE über dem KF. Die Topographie basiert auf dem Projekt „The Global Land One-km Base Elevation Project (GLOBE)“ in 1 km horizontaler Auflösung (Hastings and Dunbar, 1998).

Flugnummer	Start	Landung	Wetterlage	Max. PGSH
20110831	14:00	16:00	Hochdruck Wolkenfrei	~2000 m
20110902a	09:00	12:00	Warmfront Mittelhohe Bewölkung	~1200 m
20110902b	14:00	16:30	Hochdruck Wolkenfrei	~1600 m
20110906a	06:30	09:15	Hochdruck Wolkenfrei	~1400 m
20110906b	11:00	13:15	Hochdruck Bewölkt	~2000 m

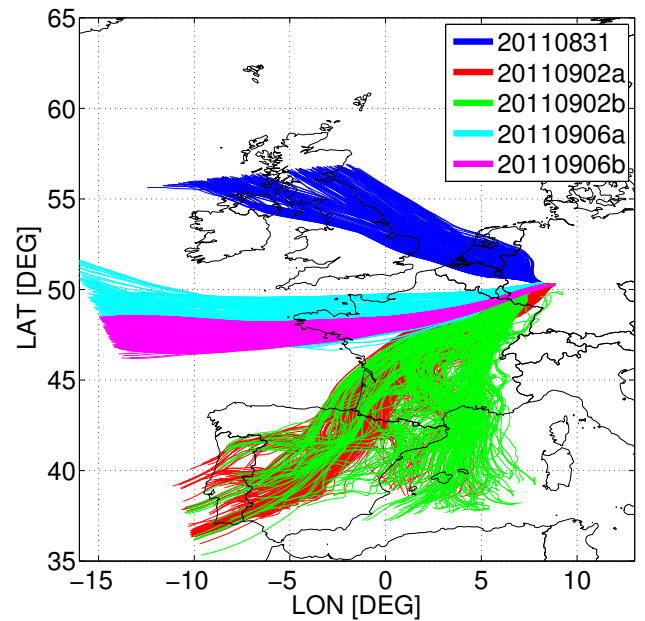
Tab. 6.1: Zusammenfassung der Wetterlagen während aller Flüge und der maximalen Grenzschichthöhe (PGSH). Bodendruckkarten und weitere Informationen sind der meteorologischen Analyse in Kapitel 3 zu entnehmen.

## Meteorologische Situation während der Flüge

In Tabelle 6.1 sind die wichtigsten Informationen zu den einzelnen Flügen zusammengefasst. Abbildung 6.2 zeigt den Ursprung der Luftmassen, mit Rückwärtstrajektorien berechnet mit LAGRANTO und COSMO-7 für alle Flüge. Die Darstellung basiert nur auf Rückwärtstrajektorien, die im Messgebiet oberhalb von 2000 m enden, um unabhängig von Einflüssen aus der PGS zu bleiben. Aufgrund der unterschiedlichen Anströmung zu jedem Flugtag wird es interessant sein zu beobachten, wie sich die mittlere Luftmassenzusammensetzung darstellt.

### Zeitreihen

Die Abbildungen 6.3 bis 6.6 zeigen die Zeitreihen der ersten vier Flüge vom 31.08.2011 bis 06.09.2011. Der letzte Flug am 06.09.2011 wird in Kapitel 7 detaillierter behandelt und aus diesem Grund hier nicht dargestellt. Zur Orientierung sind alle Vertikalprofile über dem KF in einem roten Kasten markiert; mit Ausnahme von Flug 20110906a, für den es von der Flugsicherung keine Erlaubnis gab, sodass die Sinkflüge ca. 30 km nordwestlich begonnen werden mussten. In den ersten drei Flügen war am Ozonmonitor ein gleitendes zeitliches Mittel aktiviert, wodurch das Ozonmischungsverhältnis und -gradienten stark geglättet sind.



**Abb. 6.2:** Ursprung der Luftmassen bis zu 72 Stunden erfasst mit Rückwärtstrajektorien, berechnet mit LAGRANTO und den meteorologischen Feldern von COSMO-7 entlang des Flugwegs oberhalb von 2000 m für die Flüge: 20110831 (blau), 20110902a (rot), 20110902b (grün), 20110906a (cyan) und 20110906b (magenta).

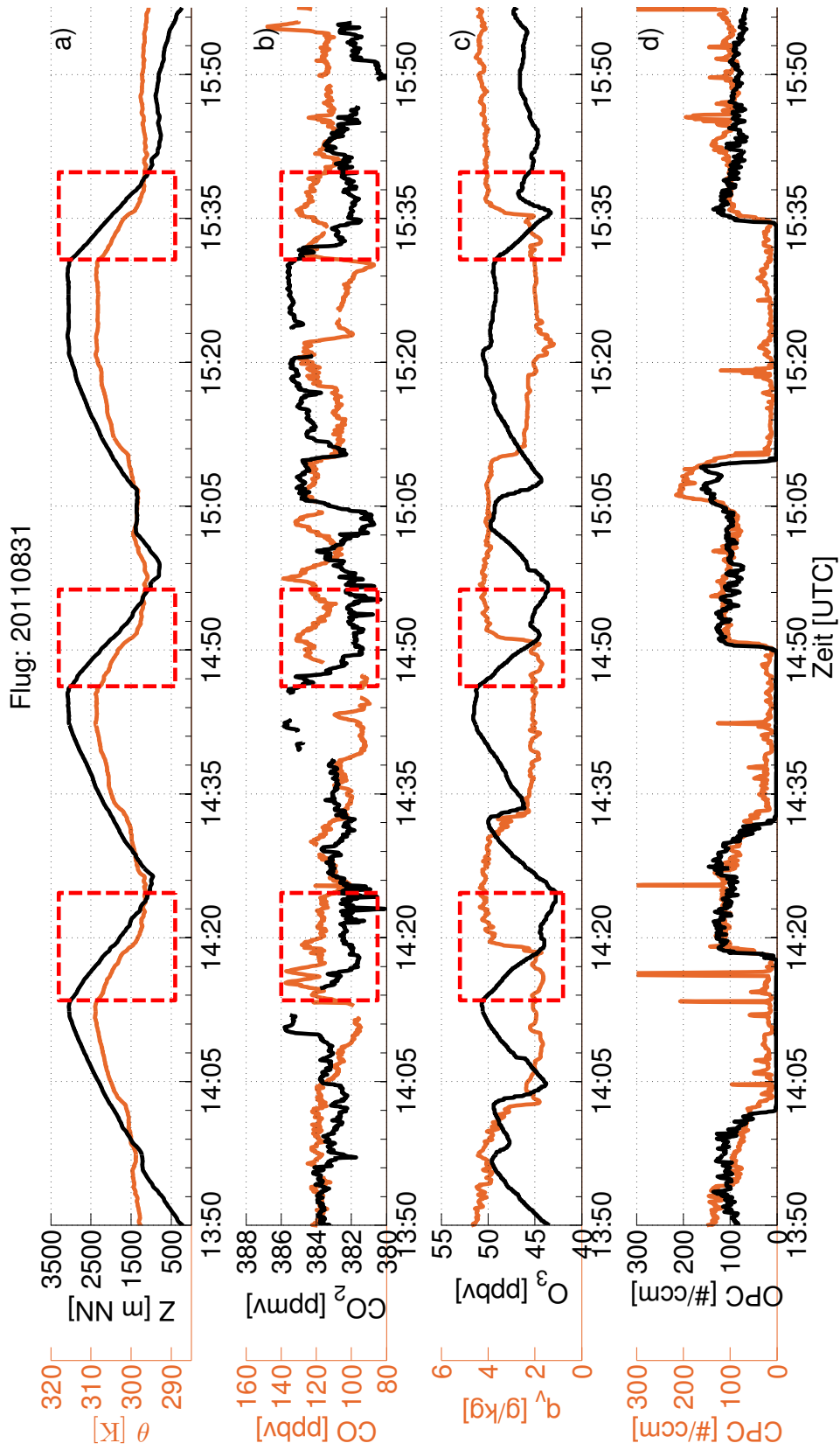
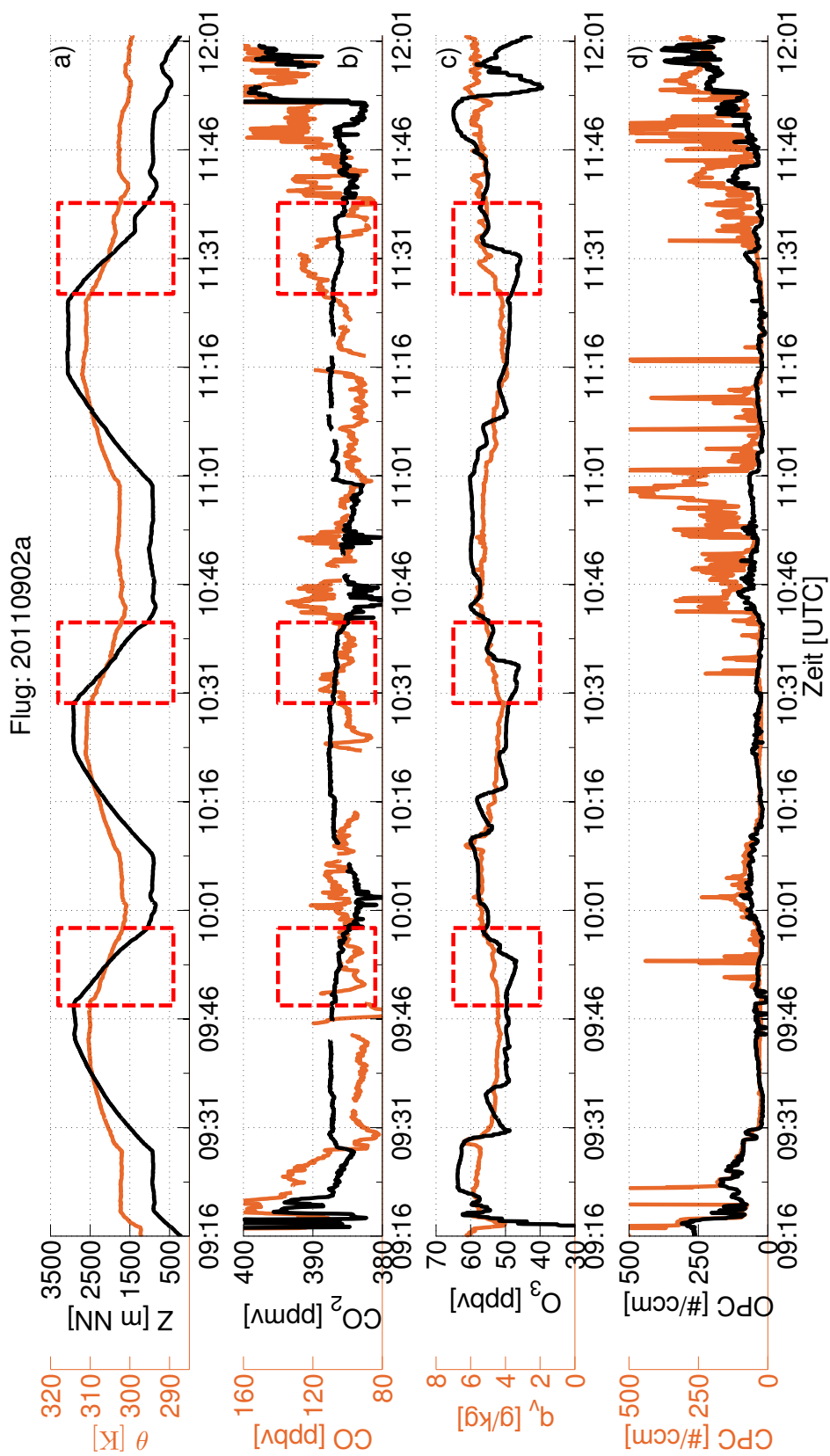
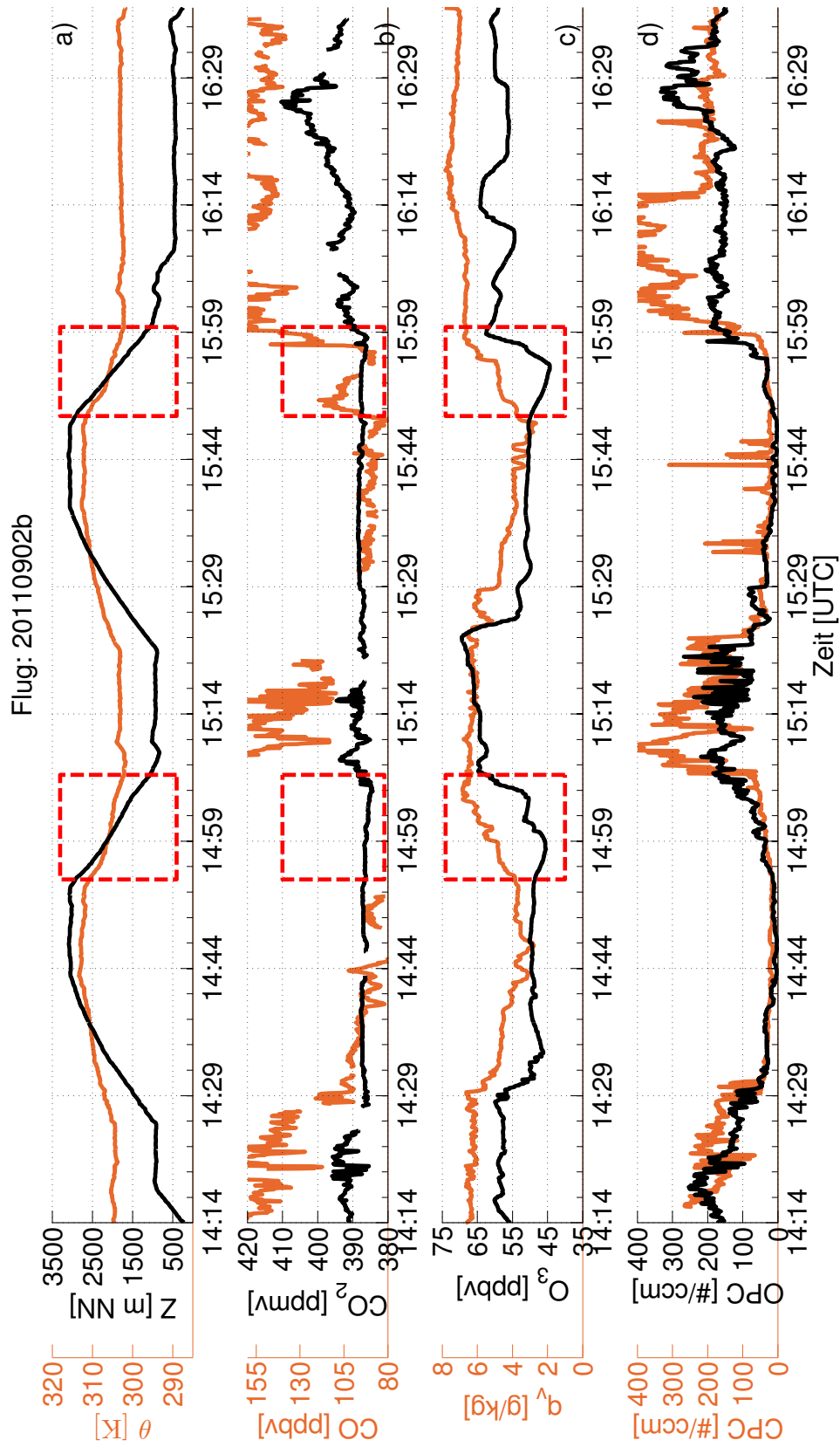


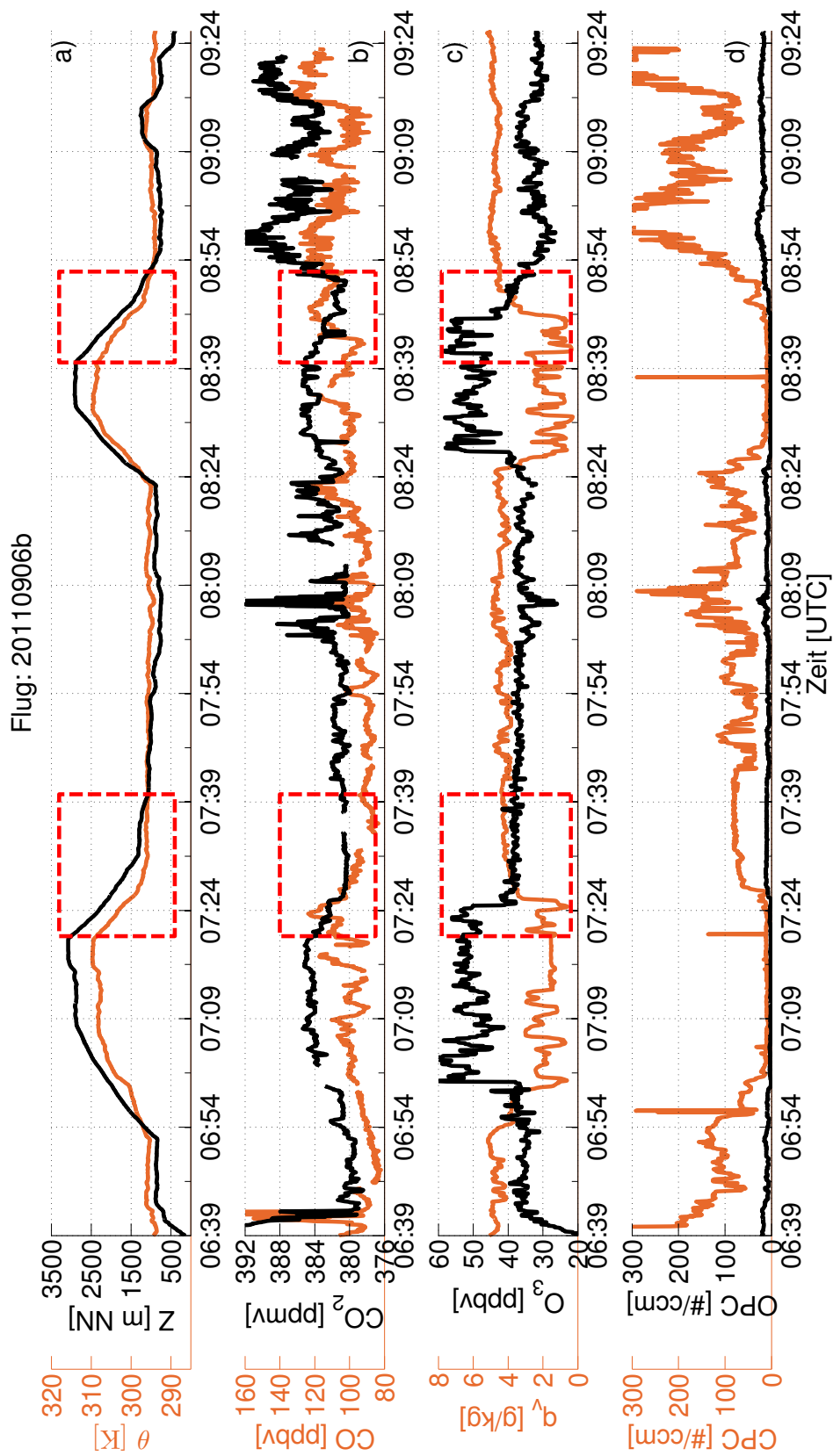
Abb. 6.3: Zeitreihen von a)  $\theta$  und der Höhe, b)  $\text{CO}_2$  und  $\text{CO}$ , c)  $\text{O}_3$  und  $q_v$ , d)  $N_{\text{OPC}}$  und  $N_{\text{CPC}}$  des Fluges 20110831. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert.



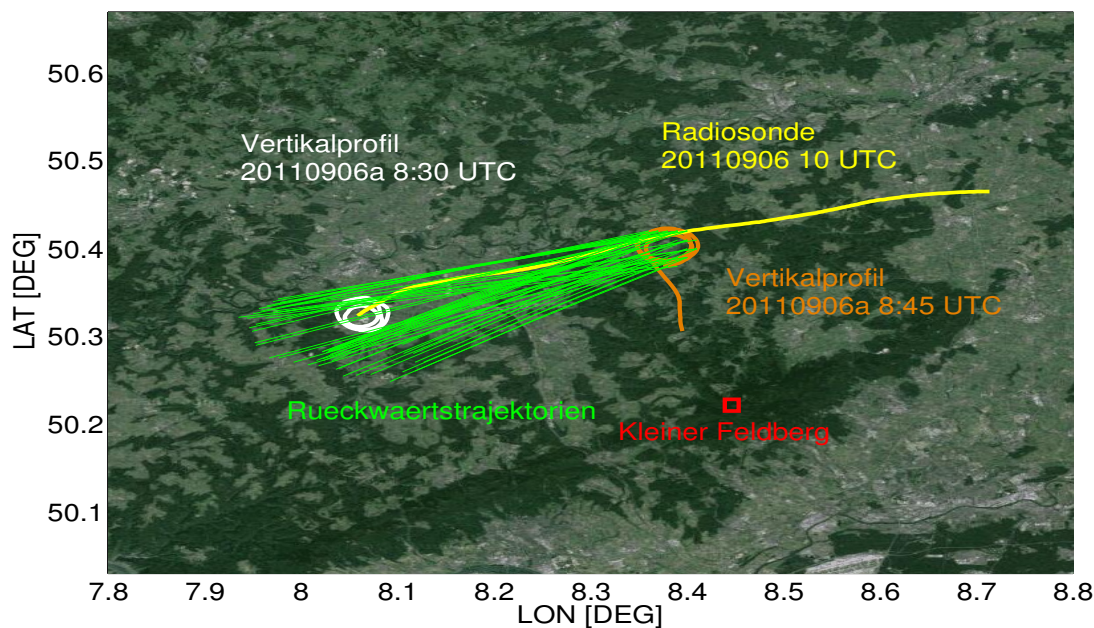
**Abb. 6.4:** Zeitreihen von a)  $\theta$  und der Höhe, b)  $\text{CO}_2$  und  $\text{CO}$ , c)  $\text{O}_3$  und  $q_v$ , d)  $N_{\text{OFC}}$  und  $N_{\text{CFC}}$  des Fluges 20110902a. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert.



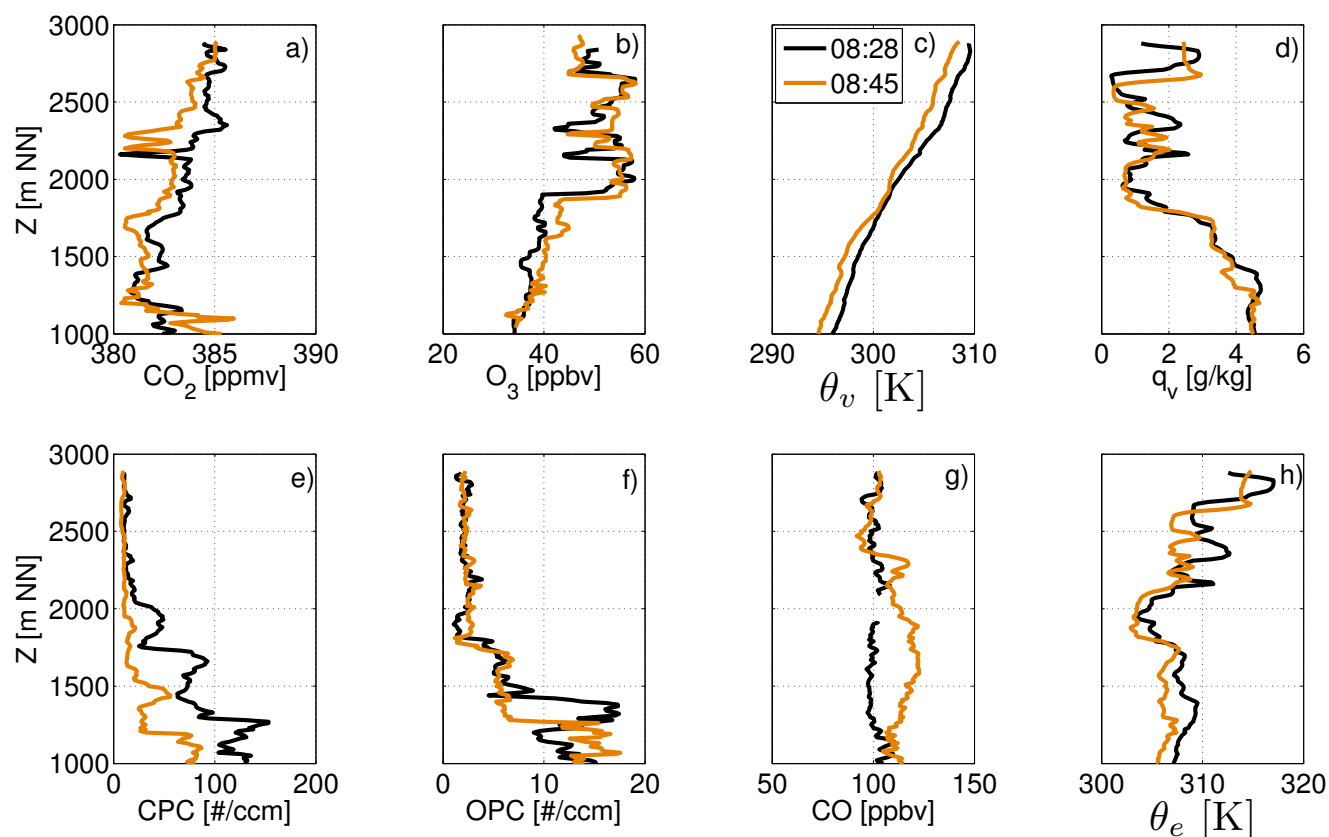
**Abb. 6.5:** Zeitreihen von a)  $\theta$  und der Höhe, b)  $\text{CO}_2$  und  $\text{CO}$ , c)  $\text{O}_3$  und  $q_v$ , d)  $N_{\text{OPC}}$  und  $N_{\text{CFC}}$  des Fluges 20110902b. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert.



**Abb. 6.6:** Zeitreihen von a)  $\theta$  und der Höhe, b)  $\text{CO}_2$  und  $\text{CO}$ , c)  $\text{O}_3$  und  $q_v$ , d)  $N_{\text{OPC}}$  und  $N_{\text{CFPC}}$  des Fluges 20110906a. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert.



**Abb. 6.7:** 2D-Ansicht der Vertikalprofile von Flug 20110906a 08:28 UTC (weiß) und 08:45 UTC (orange). Rückwärtstrajektorien (grün) zeigen die Stromrichtung und werden durch die Zugbahn der Radiosonde (gelb) bestätigt. Die Startposition der Radiosonde wurde dabei zum Mittelpunkt des ersten Vertikalprofils verschoben.



**Abb. 6.8:** Vertikalprofile von a)  $\text{CO}_2$ , b)  $\text{O}_3$ , c)  $\theta_v$ , d)  $q_v$ , e)  $N_{\text{CPC}}$ , f)  $N_{\text{OPC}}$ , g)  $\text{CO}$ , h)  $\theta_e$  vom Flug 20110906a um 08:28 (schwarz) und um 08:45 UTC (orange).

### Validierung der Messungen

Um die Messungen unter atmosphärischen Bedingungen zu validieren, wurden zwei Vertikalprofile mit einem horizontalen Abstand von rund 30 km innerhalb eines Zeitraums von 17 Minuten vermessen (Abb. 6.7). Die Messungen fanden entlang der Windrichtung statt; dies kann sowohl mit der Zugbahn einer Radiosonde (RAS) als auch mit Rückwärtstrajektorien entlang des Flugweges bestätigen werden. Abbildung 6.8 zeigt die zwei Vertikalprofile der verschiedenen gemessenen Größen. Die Vertikalstrukturen sind dabei



nahezu identisch, mit der Ausnahme von CO. Sicherlich können lokale Emissionen zu den unterschiedlichen Vertikalstrukturen führen, aber die CO-Zunahme steht im Widerspruch zu der gleichzeitigen Abnahme des CO<sub>2</sub>-Gehalts und der leichten Zunahme des O<sub>3</sub>-Mischungsverhältnisses. Darüber hinaus weisen die N<sub>CPC</sub>-Messungen deutlich geringere Anzahlpartikelkonzentrationen unterhalb von 2000 m auf, was auch gegen eine frische Emission spricht, aber im Gegensatz zum CO bleibt bei den N<sub>CPC</sub> die Vertikalstruktur zum vorherigen Profil im Wesentlichen erhalten. Demnach zeigt dieser Vergleich, dass die Instrumente im Rahmen der Messunsicherheit die Messdaten gut reproduzieren können, mit der Ausnahme von CO. Deshalb wird in dieser Arbeit auf eine weitere Analyse der CO-Messungen verzichtet.

## 6.2 Mittlere Vertikalprofile

Die Betrachtung der mittleren Vertikalverteilung der Spurengase ermöglicht es, den Einfluss von lokalen bodennahen Emissionen und Ferntransport unter unterschiedlichen synoptischen Situationen für die verschiedenen Flugtage miteinander zu vergleichen. Insgesamt wurden 13 Vertikalprofile von CO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>,  $q_v$  und Partikelanzahlkonzentration  $N_{OPC}$  über dem KF gemessen. Im Folgenden wird jedes Vertikalprofil in 200-m-Intervalle aufgeteilt, um anschließend alle Datenpunkte innerhalb dieser Intervalle zu mitteln und zu einem repräsentativen Profil für jeden Flug zusammenzufassen. Die Variation der planetaren Grenzschichthöhe (PGSH) während der Flüge war relativ groß, sodass als Referenz die maximale PGSH von 2000 m ebenfalls dargestellt ist (Abb. 6.9).

Dieses Vorgehen erlaubt es, die Luftmassenzusammensetzung in der PGS und der Luftmasse darüber, unabhängig von Grenzschichtprozessen, zu analysieren. Des Weiteren können aufgrund der unterschiedlichen Luftmassenzusammensetzungen Rückschlüsse auf die Abhängigkeit von der Großwetterlage gezogen werden. Vertikalprofile aus den aufsteigenden Flügen werden von diesem direkten Vergleich ausgeschlossen, da der Aufstiegsort häufig variierte und somit die Datendichte über einem Messort relativ gering ist.

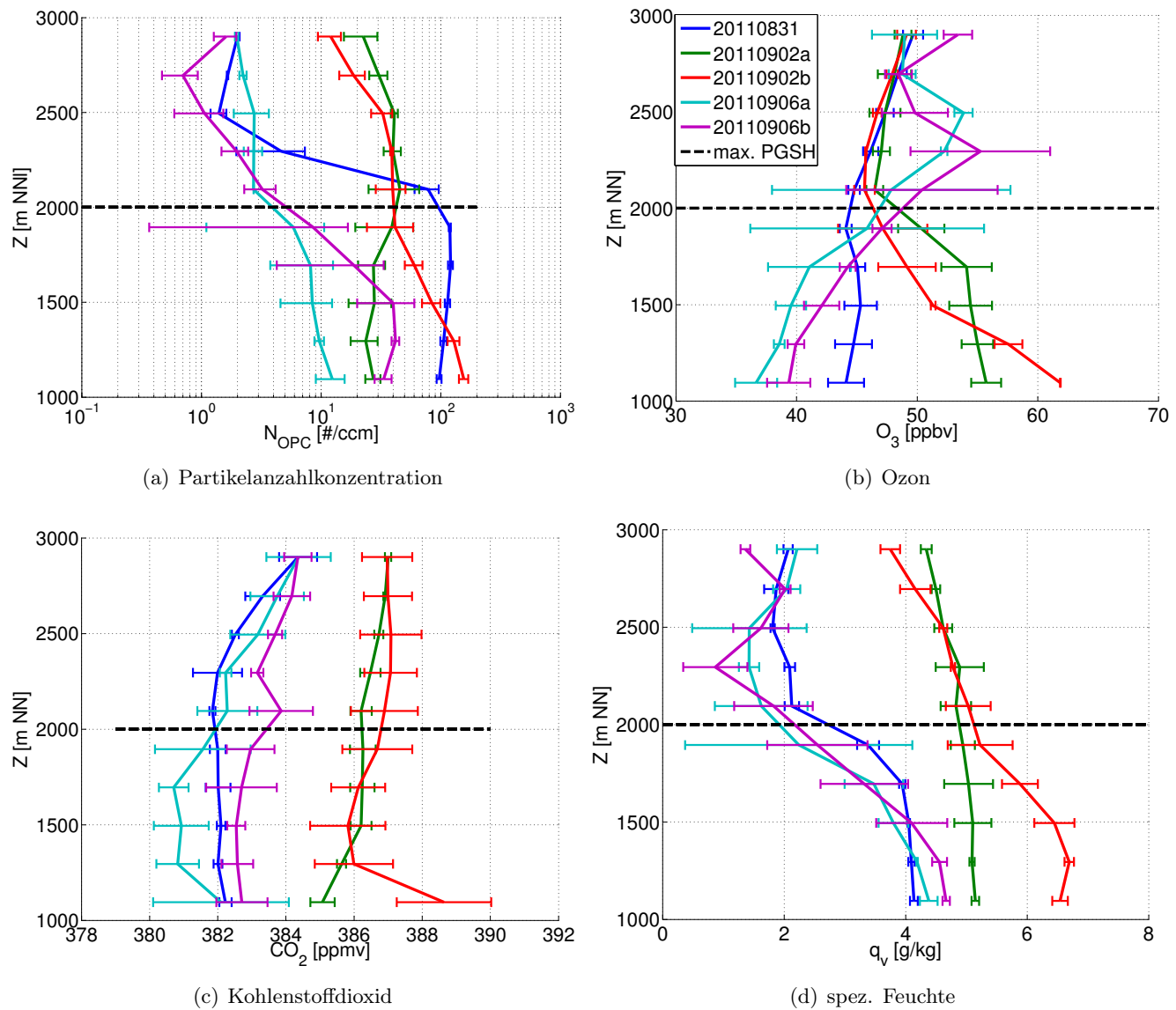
Abbildung 6.9 zeigt die mittlere vertikale Verteilung von Partikelanzahlkonzentration, CO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> und  $q_v$  für alle Flugtage in verschiedenen Farben. Es ist direkt ersichtlich, dass die Zusammensetzung an den Flugtagen 31.08. (20110831), 06.09. (20110906) und 02.09. (20110902) voneinander abweicht, obwohl alle Flüge während Hochdrucklagen durchgeführt wurden. Für die Flüge 20110831 und 20110906 ist oberhalb von 2000 m die Partikelanzahlkonzentration mit rund  $1 \text{ \#/ccm}^{-3}$  relativ klein, hingegen ist in der darunter liegenden PGS eine hohe Partikelanzahlkonzentration über  $10 \text{ \#/ccm}^{-3}$  zu beobachten. Dieser eindeutige Gradient zwischen der PGS und der FT in den  $N_{OPC}$  lässt sich auch in den weiteren Variablen  $q_v$ , O<sub>3</sub> und CO<sub>2</sub> wiederfinden. Die Luftmassen dieser beiden Flugtage stammen primär aus maritimen Regionen (vgl. Abb. 6.2), was auch in der klaren Abgrenzung zwischen der gut durchmischten und „verschmutzten“ PGS und der „sauberen“ FT zu erkennen ist.

Im Kontrast dazu weichen die Beobachtungen am 02.09. deutlich ab. Der erhöhte CO<sub>2</sub>-Gehalt ist ein Beleg für einen Luftmassenwechsel. Sowohl oberhalb als auch unterhalb von 2000 m liegt die Partikelanzahlkonzentration deutlich über  $10 \text{ \#/ccm}^{-3}$  und ist im Mittel relativ homogen. Diese homogene Struktur zeigt sich aber nicht in den Vertikalprofilen von  $q_v$ , CO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub>. Des Weiteren ist Ozon oberhalb von 2000 m deutlich reduziert im Vergleich zu den mittleren Werten in 1000 m Höhe.

Die Hebung von ehemaligen Grenzschichtluftmassen könnte eine mögliche Ursache dafür sein, dass die Luftmassen oberhalb von 2000 m in den Flugzeugmessungen verschiedene chemische Signaturen aufweisen. Dass es sich bei den gemessenen Luftmassen oberhalb von 2000 m um ehemalige Grenzschichtluftmassen handelt, kann aufgrund sowohl der Erhöhungen der Partikelanzahlkonzentration und der spezifischen Feuchte, als auch der gleichzeitigen Reduzierung des O<sub>3</sub>-Mischungsverhältnisses vermutet werden.

In der Literatur sind vergleichbare Beobachtungen zu finden: Kossmann et al. (u. a. 1999) konnten zeigen, dass Grenzschichtluftmassen unter konvektiven Bedingungen und durch die Berg-Tal-Sekundärzirkulation aus dem Tal in die FT gehoben wurden. Auch andere lokale Windsysteme können, ausgelöst durch die synoptische Situation, dafür sorgen, dass Luftmassen aus verschmutzte Regionen in die FT über eine weite Entfernung transportiert werden (u. a. Corsmeier et al., 2005).

Im Folgenden wird untersucht, ob Hebung aus der PGS die Ursache für die chemische Signatur in der FT am 02.09.2011 sein kann.



**Abb. 6.9:** Mittelung jedes Vertikalprofils in 200-m-Intervallen und zeitliche Überlagerung für den jeweiligen Flug. Vertikalprofile von  $N_{OPC}$  (a),  $O_3$  (b),  $CO_2$  (c) und  $q_v$  (d) der Flüge: 20110831 (blau), 20110902a (rot), 20110902b (grün), 20110906a (cyan) und 20110906b (magenta) über dem KF.

### 6.3 Fallstudie: Hebung von Grenzschichtluftmassen in die freie Troposphäre am 02.09.2011

Abbildung 6.10 und Abb. 6.11 zeigen verschiedene Vertikalprofile zwischen 11:30 und 12:00 UTC aus den Flugzeug- und Radiosondenmessungen am 02.09.2011. In beiden Abbildungen steigt die virtuelle potentielle Temperatur ( $\theta_v$ ) ab 1000 m an – ein Indiz für eine stabil geschichtete Atmosphäre. Unterhalb von 1000 m ist im  $\theta_v$ -Profil der RAS eine klare Abgrenzung zu der oberen Luftmasse zu erkennen. In 1100 m, 1300 m und 2100 m sind Störungen auf den  $\theta_v$ -Profilen zu beobachten, die auf mögliche Turbulenz (Instabilität) hinweisen könnten. Hingegen sind in diesen Höhenbereichen klare Separationen in den Profilen der relativen Feuchte und Windmessungen zu beobachten. Dies zeigt sich auch in den inhomogenen Profilen von  $CO_2$  und  $N_{OPC}$  (Abb. 6.10), was gegen eine turbulente Durchmischung spricht.

Aus den Profilen lässt sich demnach die Höhe einer Residualschicht in ca. 2100 m bestimmen, darüber liegt die FT. Die PGSH wird mit den Flugzeugmessungen bei ca. 1350 m ermittelt, während die Radiosonden, mit großer Übereinstimmung von verschiedenen Methoden (Kapitel 3.4), eine PGSH von 960 m aufzeigen. Die Differenz lässt sich mit unterschiedlichen Messbereichen und -zeitpunkten erklären.

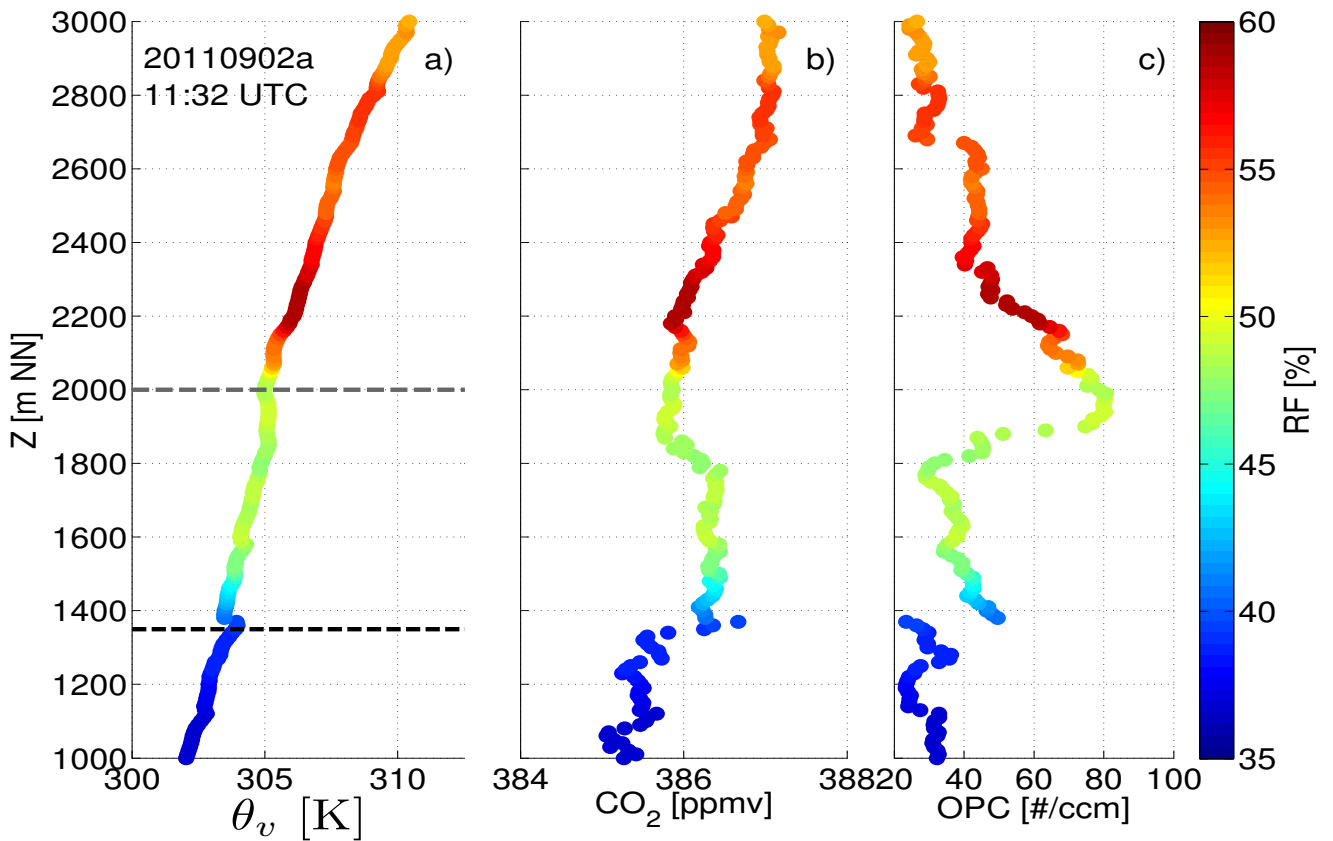


Abb. 6.10: Flugzeugmessungen von  $\theta_v$ ,  $\text{CO}_2$  und  $\text{N}_{\text{OPC}}$  eingefärbt mit der relativen Feuchte (RF) über dem KF am 02.09.11 gegen 11:32 UTC.

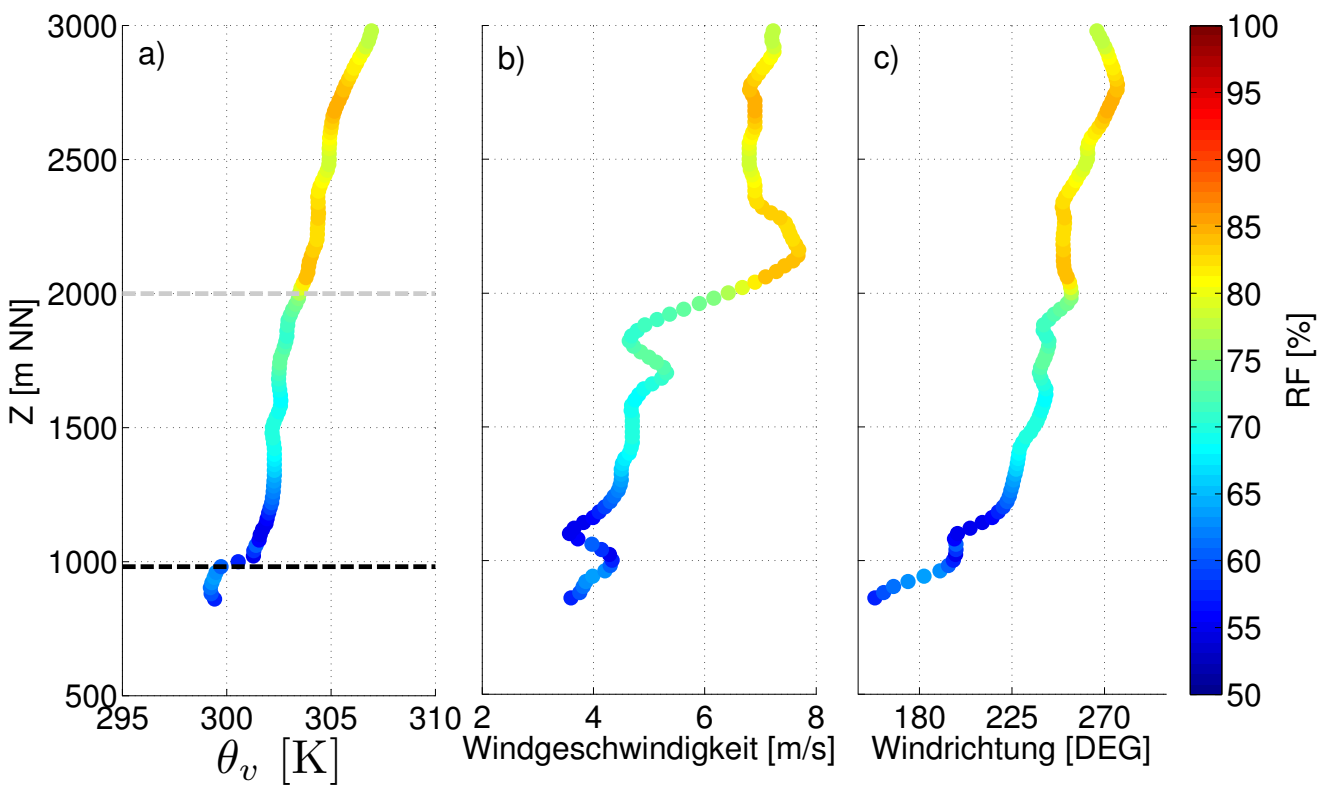


Abb. 6.11: Radiosondenmessungen von  $\theta_v$ , Windgeschwindigkeit und Windrichtung eingefärbt mit der relativen Feuchte (RF) über dem KF am 02.09.11 um 12:02 UTC.

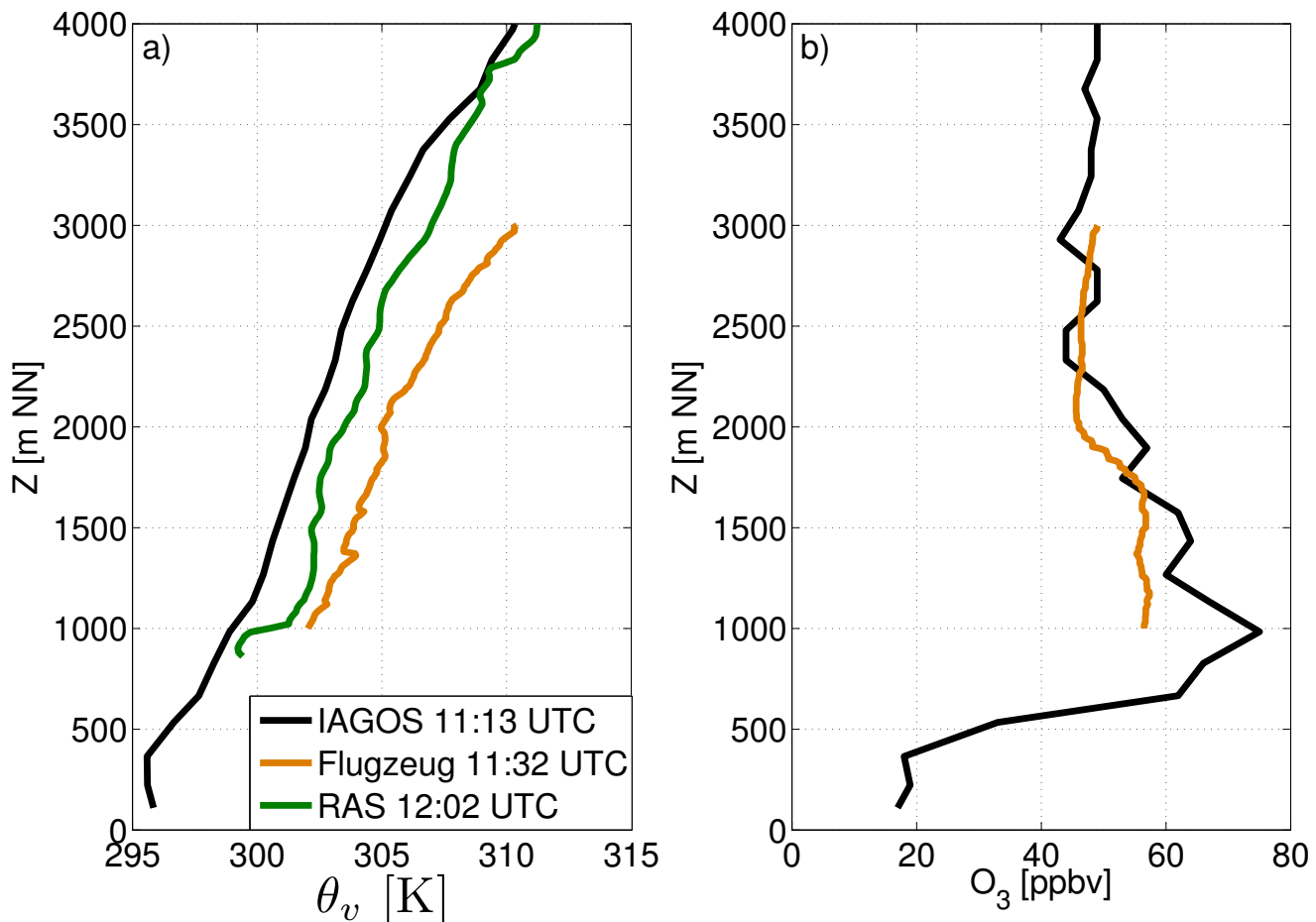


Abb. 6.12: Vertikalprofile von a)  $\theta_v$  und b) Ozon gemessen durch IAGOS (schwarz), Flugzeug (orange), Radiosonde (grün).

Die klare Separation der verschiedenen Schichten (PGS, RS, FT) sowie die Unterschiede der Messungen in 1000 m Höhe (Bodennähe) und oberhalb von 2000 m widersprechen einer lokalen Hebung. Beispielhaft ist die Partikelanzahlkonzentration zu nennen: In 2000 m ist  $N_{\text{OPC}} = 80 \text{ \#}/\text{ccm}$  und in Bodennähe (1000 m) ist  $N_{\text{OPC}} = 30 \text{ \#}/\text{ccm}$  (Abb. 6.10).

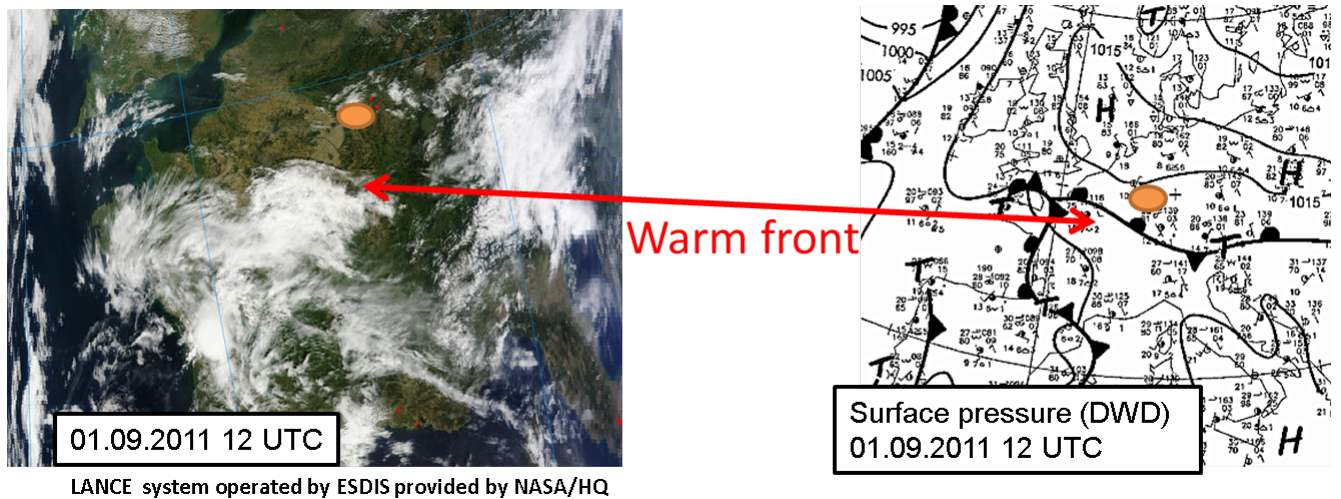
### Vergleich mit externen Messungen

Im Rahmen des IAGOS-Projekts<sup>1</sup> werden verschiedene meteorologische und chemische Variablen mit Linienflugzeugen weltweit gemessen, die ständigen Qualitätskontrollen unterliegen. Am 02.09.2011 um 11:13 UTC kreuzte solch ein Linienflugzeug die Messregion und diese Daten werden zum Vergleich herangezogen.

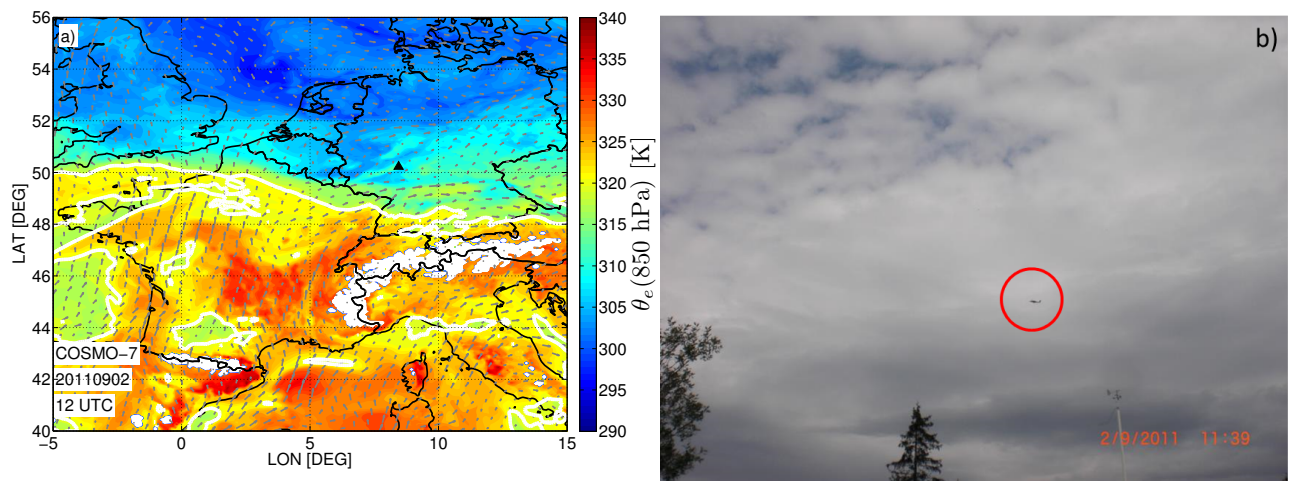
Im direkten Vergleich mit den lokalen Messungen zeigen sowohl die  $\theta_v$ -Profile als auch die  $O_3$ -Profile ähnliche Vertikalstrukturen (Abb. 6.12). Die Temperaturmessungen des Linienflugzeugs zeigen eine Zunahme der potentiellen Temperatur durch eine Temperaturinversion in 400 m Höhe und eine weitere schwächere Temperaturinversion bei 1100 m. Diese Temperaturinversionen bestätigt die variable Grenzschichthöhe aus den Radiosonden (960 m), bzw. eigenen Flugzeugmessungen (1350 m). Gleichzeitig nimmt  $O_3$  vom Boden bis zur Höhe der zweiten Temperaturinversion zu. Oberhalb der zweiten Temperaturinversion kommt es zu einer Umkehrung des Vertikalgradienten von  $O_3$ , und ein Minimum wird bei rund 2000 m erreicht. Dies ist auch in den eigenen Flugzeugmessungen zu sehen. Schließlich nehmen die  $O_3$ -Werte mit der Höhe wieder leicht zu.

Die gute Übereinstimmung der Struktur der unteren Atmosphäre und die unterschiedlichen chemischen Signaturen in diesen Schichten beweisen, dass die Vertikalschichtung äußerst komplex ist. Alle Indizien

<sup>1</sup>Messungen mit kommerziellen Flugzeugen, [www.iagos.fr](http://www.iagos.fr)



**Abb. 6.13:** Meteorologische Situation am 01.09.2011 über Westeuropa. Links: Satellitenbild kombiniert aus verschiedenen Kanälen (<http://ladsweb.nascom.nasa.gov>), rechts: Ausschnitt der Bodendruckkarte des Deutschen Wetterdienstes. Die Kombination beider Bilder zeigt Wolken an der Warmfront.



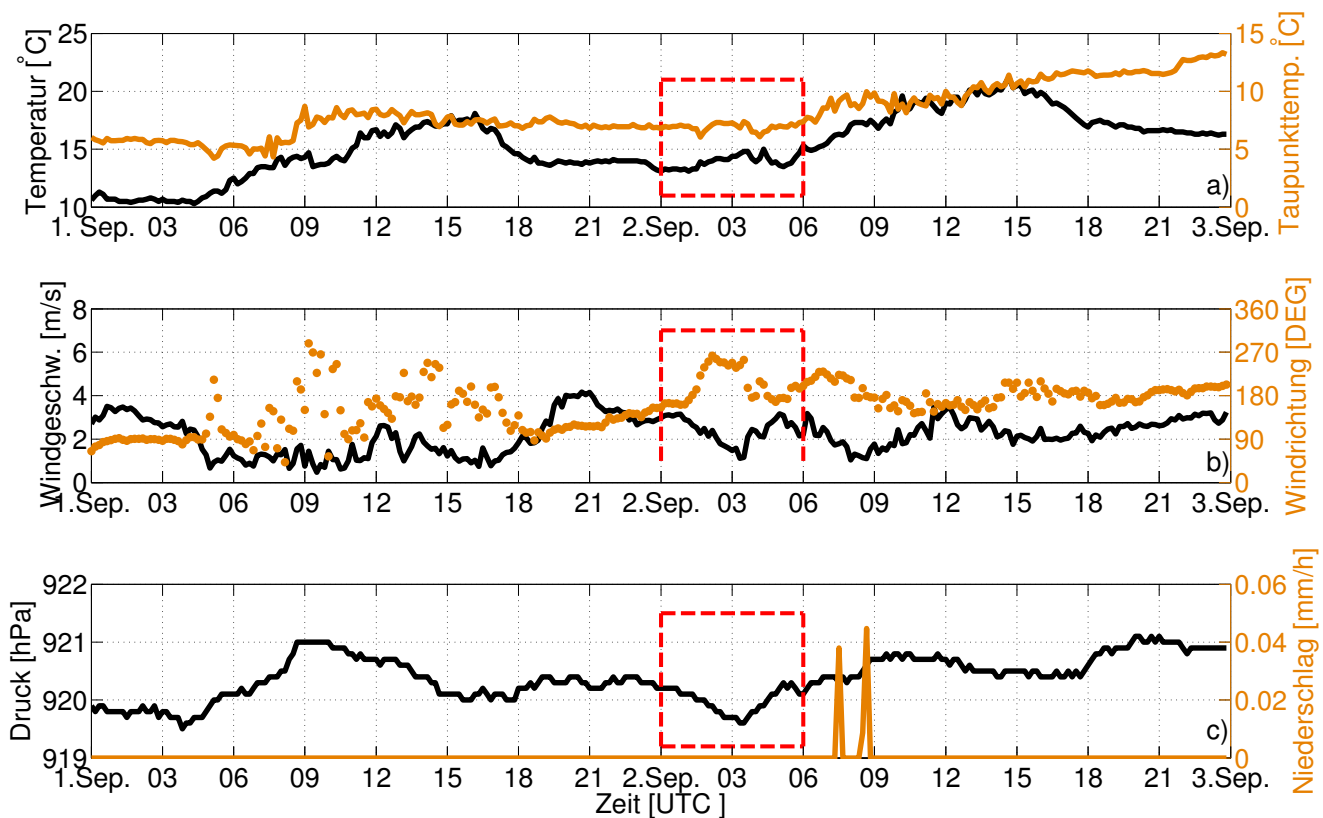
**Abb. 6.14:** a) Frontenanalyse mit der Darstellung der äquivalentpotentiellen Temperatur auf 850 hPa. Die weiße Konturlinie markiert die 320-K-Fläche, trennt die wärmeren Luftmassen (rot) von den kühleren Luftmassen (blau) und markiert somit den Übergangsbereich der Warmfront. b) Wolkenbedeckung während des Fluges 20110902a um 11:39 UTC. Blickrichtung Westen. Eingekreist ist das Flugzeug.

sprechen gegen eine lokale Hebung. Vielmehr wird Ferntransport aus einer ehemaligen Grenzschicht als mögliche Ursache für die Luftmassenzusammensetzung ( $O_3$ -Minimum,  $CO_2$ -Minimum und  $N_{OPC}$ -Maximum) in 2000 m angenommen. Es gilt nun herauszufinden, wie dieser Ferntransport zustande kommt.

### 6.3.1 Meteorologische und synoptische Situation

Welcher Hebungsprozess dafür verantwortlich sein könnte, wird in diesem Unterabschnitt untersucht. Unter anderem können Luftmassen durch Konvektion, durch erzwungene Hebung (bedingt durch die Topographie) oder durch Fronten vertikal gehoben werden.

Ein Ausschnitt der Bodendruckkarte des Deutschen Wetterdienstes (Abb. 6.13) zeigt 24 Stunden vor der eigentlichen Messung eine Warmfront, welche sich über Nordwestfrankreich bis Ostfrankreich erstreckt. Zusätzlich zur Frontenanalyse können Karten der äquivalentpotentiellen Temperatur ( $\theta_e$ ) auf 850 hPa helfen, die Grenzen der Luftmassen zu markieren. Abbildung 6.13 zeigt die feuchtwarmen Luftmassen über Frankreich, während über Deutschland noch kühlere Luftmassen liegen. Die weiße Linie markiert



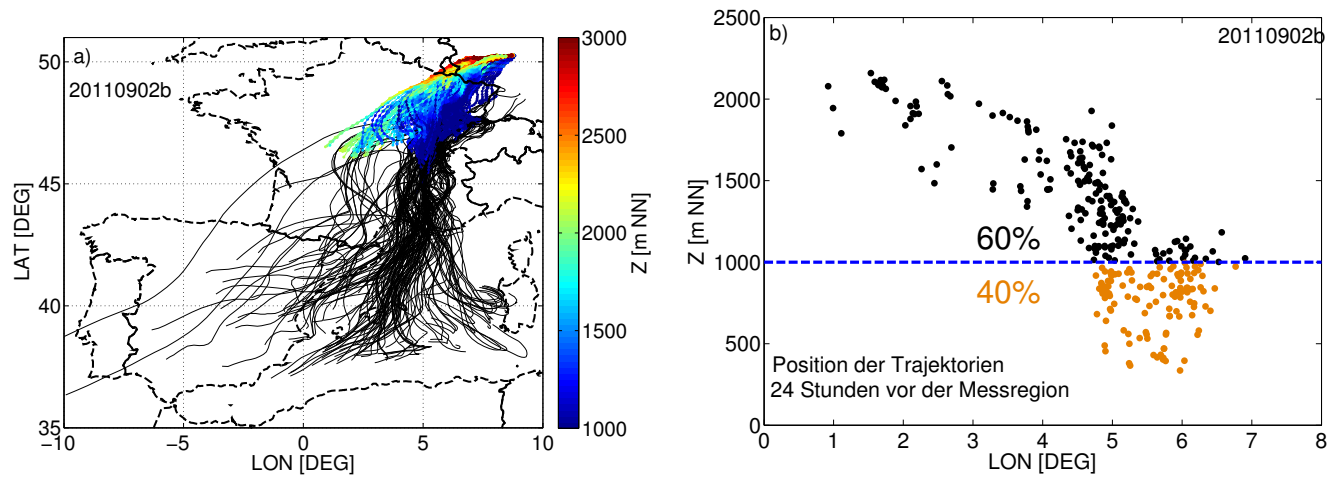
**Abb. 6.15:** Meteorologische Situation vom 01.09.2011 bis 03.09.2011 auf dem KF. Der rote Kasten markiert den Zeitraum, an dem die Warmfront den KF überquert.

dabei die 320-K-Fläche, welche mit der Position der Warmfront in der Bodendruckkarte übereinstimmt. An der Vorderseite der Warmfront wird das stationäre Hoch nach Osten verdrängt, durch die antizyklonale Rotation die Anströmung von feuchtwarmer Luft aus Südwesten verstärkt, die auf der Rückseite dieser Warmfront liegt. Diese feuchtwarme Luftmasse sorgt für Labilisierung der oberen Luftschichten und könnte somit das Aufgleiten der Luftmassen hinter der Warmfront zusätzlich fördern. Das Anheben der feuchtwarmen Luftmassen führt zur Bildung von Wolken entlang der Warmfront, was auch auf Satellitenbildern zu erkennen ist (Abb. 6.13).

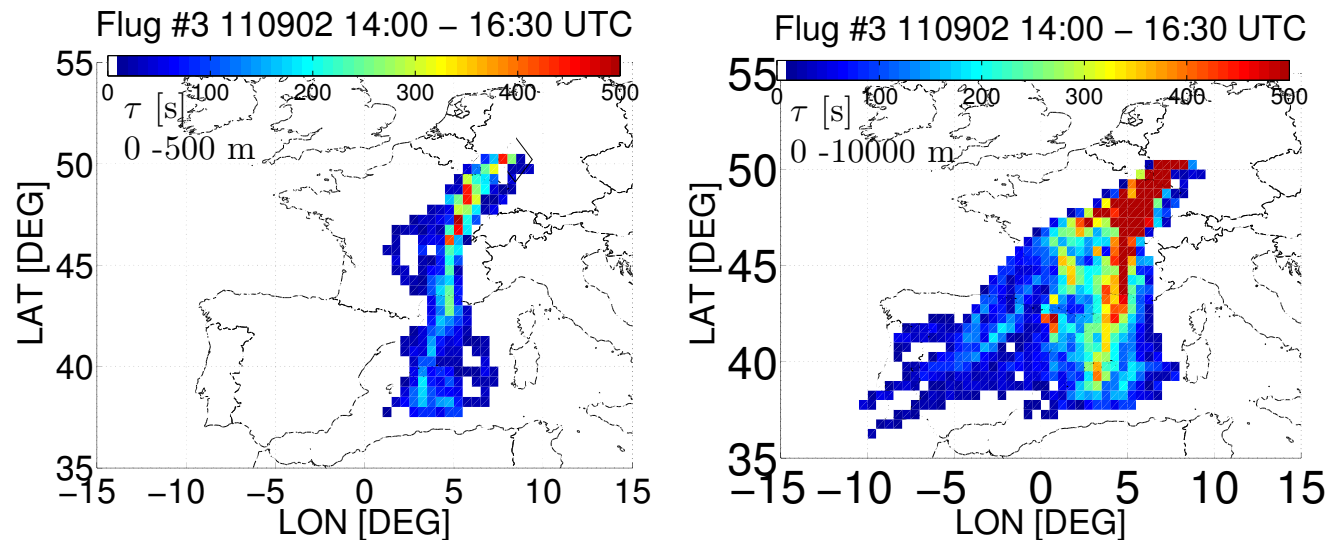
Die Warmfront zieht im Weiteren Richtung Nordwesten und überquert die Messregion zwischen 1 und 3 UTC. Dies kann anhand der Messungen verschiedener Variablen am Messort bestätigt werden. Häufig wird der Durchzug einer Warmfront begleitet von

- Luftdruckabnahme
- Anstieg der Temperatur und der Taupunkttemperatur
- Rechtsdrehung des Windes
- Schichtbewölkung
- Niederschlag.

Neben der Temperaturerhöhung sind eine Richtungsänderung des Windes und ein Druckabfall zu beobachten. Niederschlag wurde zwischen 6 und 9 UTC beobachtet (Abb. 6.15) und auch die Schichtbewölkung ist in Abb. 6.13 zu sehen. Nach dem Niederschlag ist eine fast geschlossene Wolkendecke oberhalb von 3000 m bis ca. 12 UTC vorhanden, die sich ab 13 UTC auflöst (Abb. 6.13). Es scheint möglich, dass es einen Zusammenhang zwischen den beprobten Luftmassen oberhalb von 2000 m und der Hebung durch die Warmfront gibt. Dies wird im weiteren mit Trajektorien untersucht.



**Abb. 6.16:** a) Ursprung der Luftmassen dargestellt mit Rückwärtstrajektorien, basierend auf COSMO-7 bis zu 72 Stunden entlang des Flugprofils 20110902b, enden oberhalb von 1000 m an der Messregion. In Farbe die Höhe der Trajektorien der letzten 24 Stunden (enden oberhalb von 2000 m). b) Position der Trajektorien 24 Stunden vor dem Erreichen der Messregion (enden oberhalb von 2000 m) während des Fluges 20110902b.



**Abb. 6.17:** Aufenthaltszeit der Trajektorien integriert über den gesamten Simulationszeitraum von 72 Stunden, basierend auf COSMO-7. Dargestellt ist die Aufenthaltszeit in den unteren 500 m (links) und die Aufenthaltszeit über die gesamte Vertikalsäule (rechts).

### 6.3.2 Trajektorien

Die Überprüfung der Hypothese, dass der Ursprung der beprobten Luftmassen in Relation mit der möglichen Hebung durch die Warmfront zu setzen ist, kann über Rückwärtstrajektorien erfolgen. Hierzu werden Rückwärtstrajektorien mit einer Auflösung von 10 Sekunden entlang des Flugprofils initialisiert und bis zu 72 Stunden entlang der Windfelder der COSMO-7-Analysen zurückverfolgt.

Abbildung 6.2 zeigte bereits, dass die Luftmassen für die Flüge 20110902a und 20110902b aus Südeuropa stammen. Exemplarisch werden im Weiteren die Rückwärtstrajektorien für den Flug 20110902b betrachtet. Abbildung 6.16a zeigt die Rückwärtstrajektorien, die den Verlauf der Luftmassen am 02.09.2011 widerspiegeln. Die Luftmassen stammen vorwiegend aus Spanien und aus Südfrankreich. Die Farbskala gibt die Höhe der Trajektorien der letzten 24 Std. an, die im Messort oberhalb von 2000 m enden. Tiefe Trajektorien sind blau, während hohe Trajektorien rot markiert sind. Insgesamt befinden sich demnach am Aufstiegsort, 24 Stunden vor der Beobachtung am Messort, 40 % aller Trajektorien unterhalb von

1000 m und 60 % darüber (Abb. 6.16b). Von diesem Zeitpunkt an steigen die Trajektorien langsam an, bis sie schließlich die Messregion oberhalb von 2000 m erreichen. Am Ort des Aufstiegs beträgt die mittlere PGSH nach COSMO-7 rund 1100 m. Diese Höhe kann bestätigt werden mit dem nächstliegenden operationellen Radiosondenaufstieg in Payerne/Schweiz (<http://weather.uwyo.edu>). Somit bestätigen die Rückwärtstrajektorien die Hypothese, dass die beobachteten Luftmassen vor Erreichen des Messortes gehoben wurden.

Die Trajektorien werden nun genutzt, um eine relative Aufenthaltszeit der Luftmassen in Bodennähe zu bestimmen. Es werden dabei nur die Rückwärtstrajektorien verwendet, die oberhalb von 2000 m entlang des Flugweges 20110902b gestartet sind. Im ersten Schritt wird die Position aller Trajektorien für jeden Zeitschritt (stündlich verfügbar) auf einen gerasterten Längen-Breiten-Ausschnitt gelegt. Die Dichte der Datenpunkte ergibt sich aus der Anzahl der Trajektorienpunkte innerhalb eines Rasters gegenüber der Gesamtzahl der Trajektorienpunkte. Die relative Aufenthaltszeit in jedem Raster bestimmt sich aus der Gesamtaufenthaltszeit, die für jeden Zeitschritt eine Stunde beträgt. Um die Aufenthaltszeit ( $\tau$ ) entlang des gesamten Trajektorienweges darzustellen, werden alle Zeitschritte aufsummiert. Diese Aufenthaltszeit ist gleichbedeutend mit der Identifizierung möglicher Quellregionen, die sensitiv auf die Beobachtung gewirkt haben können. Das heißt, je länger eine Luftmasse sich über einem Gebiet aufgehalten hat, umso wahrscheinlicher ist es, dass sie die chemische Signatur dieses Gebiets beinhaltet.

Abbildung 6.17 zeigt die relative Aufenthaltszeit in den unteren 500 m, welche repräsentativ für einen Aufenthalt nah am Boden ist, und die Aufenthaltszeit für die gesamte vertikale Säule. Die Aufenthaltszeit über die komplette Vertikalsäule zeigt, dass die Luftmassen sowohl aus Spanien als auch aus Südfrankreich stammen; die höchsten Aufenthaltszeiten werden über Ostfrankreich berechnet (Abb. 6.17b). Hingegen ist die Aufenthaltszeit der Trajektorien unterhalb von 500 m deutlich erhöht im Rheintal, nördlich des Rhonetals bis zum Mittelmeer über Frankreich. Über Spanien weisen die Trajektorien keine Nähe zum Boden auf und die Luftmassen befinden sich hier in höheren Vertikalschichten. Demnach stammt die beprobte Luftmasse (ozonarm und erhöhte Partikelanzahlkonzentration), sofern die Luftmassen ihren Ursprung in der PGS haben, mit großer Wahrscheinlichkeit aus dem Rheintal in Ostfrankreich bis nach Südfrankreich.

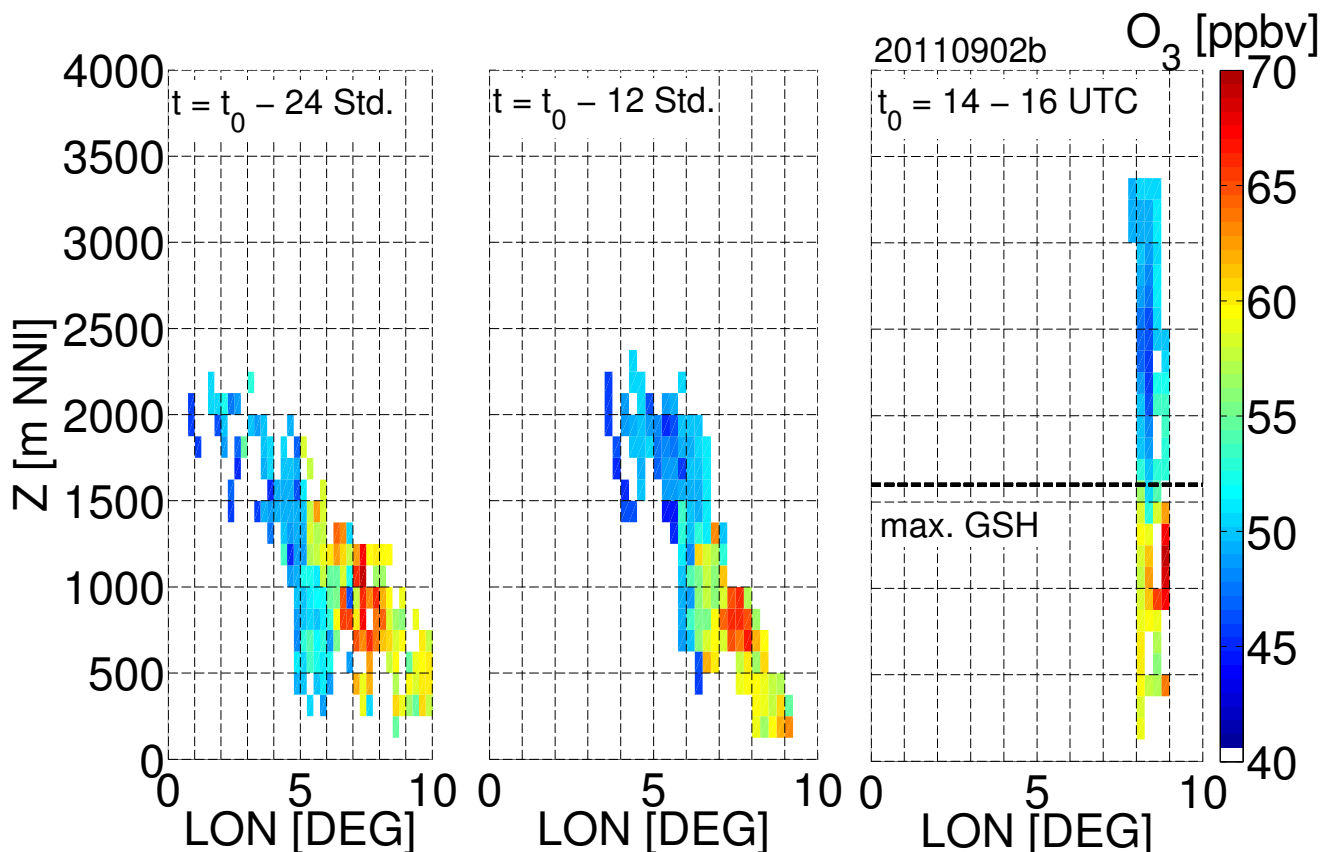
In der Literatur finden sich andere Beispiele dafür, dass Grenzschichtluftmassen im Sommer über Europa, effektiv durch Konvektion in die obere Atmosphäre transportiert werden können (Hov and Flato, 1997). Ein subjektiver visueller Vergleich der Position von Wolken (mit Infrarot-Satellitenmessungen) mit der Position der Rückwärtstrajektorien zu verschiedenen Zeitpunkten zeigte, dass die Trajektorien 30 Stunden vor dem Erreichen des Messortes nicht in der Nähe einer konvektiven Gewitterzelle waren (nicht gezeigt). Entferntere Zeitpunkte können dagegen durchaus auch in Verbindung mit Konvektion stehen. Allerdings widerspricht die beobachtete hohe Partikelanzahlkonzentration am Messort einer konvektiven Hebung mit Wolkenbildung, da die Partikel zum größten Teil ausgewaschen worden wären.

Dieses Ergebnis zeigt, dass den Trajektorien bezüglich des Hebungsorts bis 30 Stunden vor dem Erreichen der Messregion vertraut werden kann (Abb. 6.16). Demnach ist der Hebungsort in Ostfrankreich mit der höchsten Aufenthaltszeit (Abb. 6.17) bestärkt und damit einhergehend mit der Position der Warmfront in diesem Zeitraum (Abb. 6.13).

### 6.3.3 Hebung entlang einer Warmfront

Um den Hebungsprozess durch die Warmfront weiter zu untersuchen, werden nochmals die Rückwärtstrajektorien herangezogen. Zusätzlich werden die Ozonmessungen auf die Trajektorien eingelagert. Es wird dabei angenommen, dass das Ozonmischungsverhältnis entlang der Trajektorien sich nicht verändert (photochemisch oder Deposition) und konstant bleibt. Im nächsten Schritt werden die Positionen der Trajektorien für drei Zeitschritte (-24 Stunden, -12 Stunden und Zeitpunkt der Messung) vor der Ankunft an der Messstation auf eine gerasterte Karte gelegt. Die Rasterweite des Rasters beträgt  $0.25^\circ$  und 125 m in der Vertikalen. Alle Punkte innerhalb eines Volumens zum jeweiligen Zeitschritt beinhalten das entsprechende Ozonmischungsverhältnis und werden innerhalb einer Rasterbox gemittelt.





**Abb. 6.18:** Zeitlicher Transport der ozonarmen und ozonreichen Luftmassen basierend auf den Rückwärtstrajektorien während des Fluges 20110902b. Die Ozonmessungen vom Flugzeug wurden dazu mit den Trajektorien überlagert und auf eine Karte in LON-Z für drei Zeitschritte gelegt. Alle Datenpunkte innerhalb einer Box wurden gemittelt.

Abbildung 6.18 zeigt für die oben genannten Zeitschritte die gemittelte Längengrad-Vertikal-Verteilung. Die PGSH lag während des Fluges 20110902b maximal bei 1600 m, sie ist zur Orientierung eingezeichnet. Deutlich oberhalb der PGSH ist eine ozonarme Luftmasse (blau) zu erkennen im Vergleich zu den ozonreichen Luftmassen (gelb-rot) unterhalb der lokalen PGSH. Basierend auf den Windfeldern von COSMO-7 sind 12 Stunden vor der Beobachtung diese Luftmassen weiterhin voneinander getrennt. Die ozonarmen Luftmassen verlieren rückwärts blickend an Höhe und liegen vor den ozonreichen Luftmassen. Weitere 12 Stunden vorher befinden sich die ozonarmen Luftmassen zwischen ca. 500 und 1000 m Höhe. Die mittlere PGSH zu diesem Zeitpunkt liegt dabei bei ca.  $1100 \pm 250$  m basierend auf COSMO-7 (vgl. Abb. 6.16). Somit befinden sich diese Luftmassen innerhalb der PGS; dies verdeutlicht noch einmal, dass die Luftmassen mit geringen Ozonmischungsverhältnissen ehemals aus dieser Schicht gehoben wurden.

In der physikalischen Zeitbetrachtung befindet sich die ozonarme Luftmasse 12 Stunden vor der Messung auf 1500 m und damit deutlich oberhalb der nächtlichen stabilen Schicht. Somit ist eine Deposition von  $O_3$  auszuschließen und  $O_3$  kann als konstant über die Zeit angenommen werden. Im weiteren Verlauf steigen diese Luftmassen weiter an, bis sie schließlich an den Messort gelangen. Dabei lassen sich keinerlei Interaktionen mit den darunter liegenden ozonreichen Luftmassen beobachten (Abb. 6.18). Abgeleitet aus der Steigung der Trajektorien über die letzten 24 Stunden beträgt die mittlere Aufgleitgeschwindigkeit der ozonarmen Luftmasse rund  $0.03 \text{ cm s}^{-1}$  bei einem Neigungsverhältnis von  $\sim 1 : 100 \text{ km}$ . Dies liegt etwas unterhalb der maximalen Aufgleitgeschwindigkeit einer Warmfront, die häufig zwischen 700 und 500 hPa mit  $0.1 \text{ cm s}^{-1}$  liegt (Kunz, 1990).

Eindeutige Zeichen für die Hebung von Grenzschichtluftmassen aus Frankreich entlang einer Warmfront werden von den Beobachtungen, der Wetterlage und ebenso von Rückwärtstrajektorien gestützt.

### 6.3.4 Wie vertrauenswürdig sind die Trajektorien?

Doch wie repräsentativ können Rückwärtstrajektorien innerhalb der PGS sein? Stohl et al. (2002) weisen bereits darauf hin, dass einzelne Trajektorien kein komplettes Messvolumen untersuchen können, da die Filamentierung dieses Volumens durch Advektion und Windscherung verformt und somit ausgedünnt wird (Smith, 1966). Stohl et al. (1998) zeigen, dass für den mittleren Trajektorienweg bereits nach wenigen Tagen eine Unsicherheit von 15 bis 20 % der Herkunft in Betracht gezogen werden muss, für komplexe Wetterlagen kann die Unsicherheit sogar 100 % betragen. Des Weiteren ist bekannt, dass die subskaligen Prozesse wie der turbulente Transport innerhalb der PGS (Stohl and Wotawa, 1995) und Konvektion (Freitas et al., 2000) in den Modellen parametrisiert werden müssen und somit zusätzlich die Unsicherheiten des Trajektorienweges erhöhen können. In den letzten zwei Jahrzehnten ist die Genauigkeit der numerischen Rechnung durch leistungsstärkere Computer deutlich gewachsen und verschiedene Klassen von Lagrangschen Transportmodellen sind entwickelt worden, um Dispersion und turbulente Mischung entlang Trajektorien zu berücksichtigen (Lin et al., 2012). Eines dieser Modelle ist das Lagrangsche Partikel Dispersion Modell (LPDM) FLEXPART (Stohl et al., 2005).

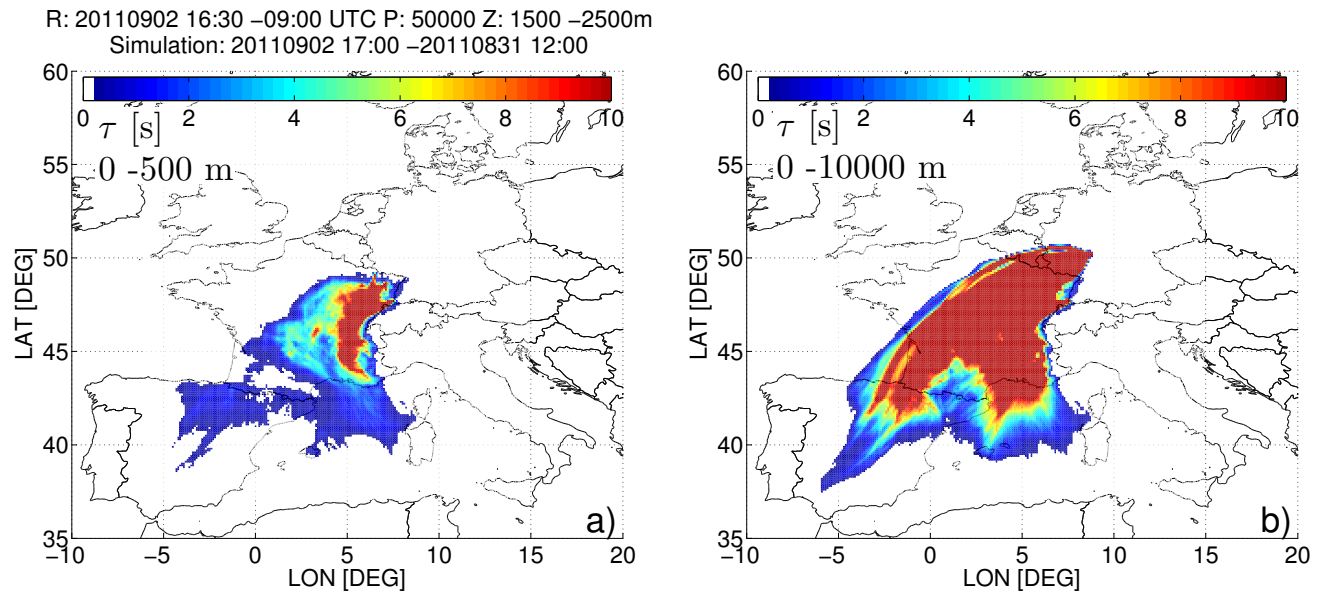
### 6.3.5 FLEXPART-COSMO-7 und FLEXPART-COSMO-EU

Um die Untersuchung zur Warmfront mit Berücksichtigung der oben genannten zusätzlichen Prozesse in der PGS zu vertiefen, werden Simulationen mit dem FLEXPART-COSMO-Modell mit den meteorologischen Variablen von COSMO-7 und der folgenden Konfiguration über den Simulationszeitraum vom 02.09.2011 18 UTC bis 31.08.11 12 UTC durchgeführt. Dazu wurden am Ort der Beobachtung zwischen 1500 und 2500 m 50000 passive Partikel über den Zeitraum der beide Flüge am 02.09.2011 freigesetzt; und ähnlich zu den Trajektorien wird die Aufenthaltszeit mit diesen passiven Partikeln berechnet. Ausgeschlossen werden dabei Feucht- und Trockendeposition.

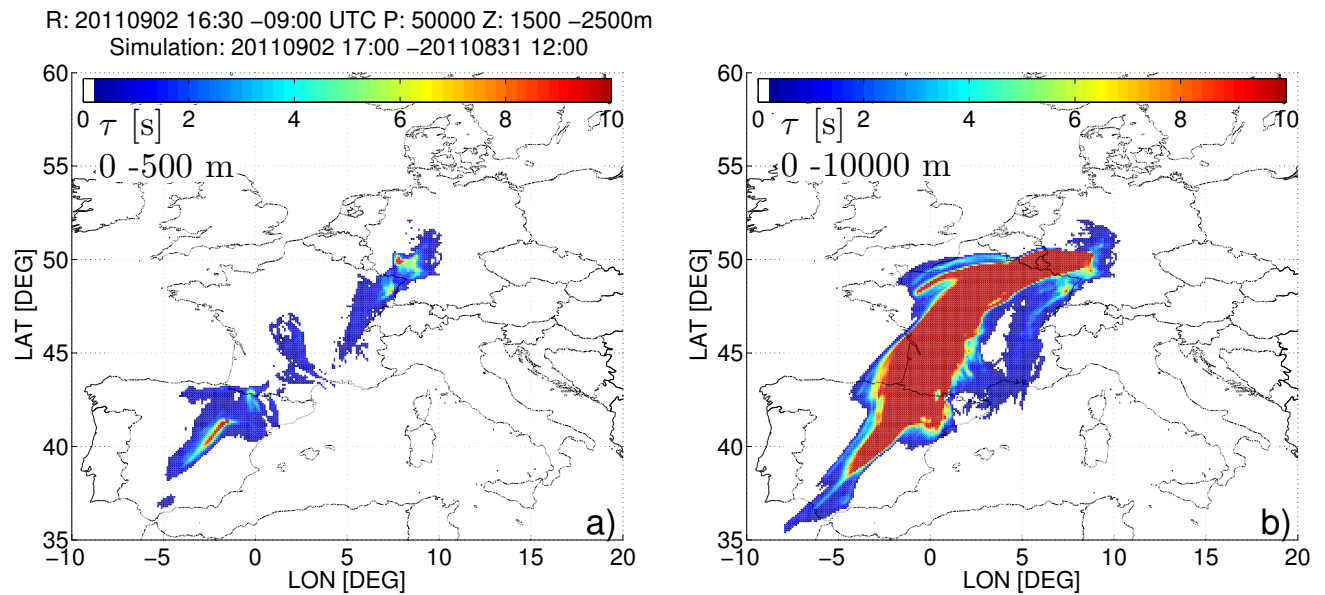
In Abbildung 6.19 ist die Aufenthaltszeit der Luftmassen unterhalb von 500 m und für die gesamte vertikale Säule dargestellt. Je höher die Aufenthaltszeit, umso größer die Wahrscheinlichkeit, dass die vermessenen Luftmassen durch diese Region mitbestimmt wurden. In der gesamten Säule ist deutlich zu erkennen, dass die Luftmassen ihren Ursprung in Südfrankreich und Spanien haben und der Verlauf sehr ähnlich zu den Rückwärtstrajektorien ist (vgl. Abb. 6.17). Deutlicher werden die Gemeinsamkeiten mit den Ergebnissen aus den Trajektorien in den unteren 500 m. Es ist eine Erhöhung der Aufenthaltszeit über Ost- und Südfrankreich zu erkennen. Zusätzlich wird ein weiterer geringer Anteil von Luftmassen in Bodennähe in Spanien bestimmt.

Die Dauer der Aufenthaltszeit von ca. 10s ist relativ kurz im Vergleich zu den berechneten Aufenthaltszeiten mit den Rückwärtstrajektorien. Doch der entscheidende Unterschied ist, dass FLEXPART die Turbulenz bzw. Konvektion entlang des Transportweges berücksichtigt. Doch dies wirkt sich auf die Ergebnisse der beiden Modelle nicht sonderlich aus.

Die Luftmassen werden ehemals aus der PGS über Frankreich gehoben und zur Messregion getragen. Dabei weist die Region um Ostfrankreich die höchsten Aufenthaltszeiten auf. Demnach spielt die zusätzliche Modifikation der Windfelder durch das LPDM keine ausschlaggebende Rolle für das Ergebnis. Im Folgenden wurde der Einfluss des antreibenden Datensatzes auf die Ergebnisse der Lagrangschen Analyse getestet. Nach einigen Modifikationen des FLEXPART-COSMO-Codes ist es nun möglich, erstmals dieses Modell mit COSMO-EU-Analysen zu betreiben (siehe Anhang). FLEXPART-COSMO-EU wurde dazu mit der gleichen Konfiguration wie die COSMO-7-Analysen betrieben. Überraschenderweise zeigten sich deutliche Unterschiede in Aufenthaltszeit und -ort im Vergleich zu den COSMO-7-Simulationen (Abb. 6.20). In der Gesamtsäule ist zu sehen, dass die Luftmassen sowohl aus Südfrankreich als auch aus Spanien stammen. Der Anteil an Luftmassen aus Südfrankreich ist aber deutlich geringer als der Anteil der Luftmassen aus Spanien im Vergleich zu COSMO-7. Der Grund dafür kann in den unteren 500 m gefunden werden (Abb. 6.20a). Ein geringer Anteil der freigesetzten Partikel hat bereits am Messort eine erhöhte Aufenthaltszeit, was mit COSMO-7 nicht beobachtet wurde (vgl. Abb. 6.19a). Ein Teil der Partikel folgt nun den Windfeldern innerhalb der PGS, und somit kommt es zu der schwachen Ausbreitung der Partikel



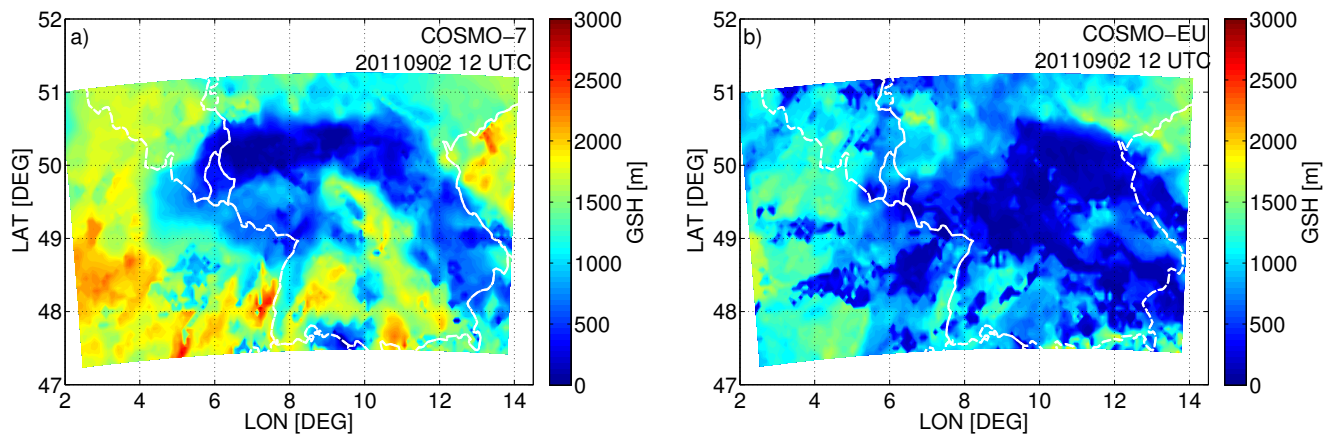
**Abb. 6.19:** Simulierte und integrierte Aufenthaltszeit ( $\tau$ ) a) für bodennahe Luftmassen und b) über die gesamte Vertikalsäule. Die Partikel (P) wurden im Flugbereich (Z) zwischen 1500 - 2500 m über den Flugzeitraum (R) von 20110902a und 20110902b freigesetzt. Der Simulationszeitraum beträgt 72 Stunden und basiert auf den meteorologischen Feldern von COSMO-7.



**Abb. 6.20:** Simulierte und integrierte Aufenthaltszeit ( $\tau$ ) für a) bodennahe Luftmassen und b) über die gesamte Vertikalsäule. Die Partikel (P) wurden im Flugbereich (Z) zwischen 1500 - 2500 m über den Flugzeitraum (R) von 20110902a und 20110902b freigesetzt. Der Simulationszeitraum beträgt 72 Stunden und basiert auf den meteorologischen Feldern von COSMO-EU.

Schichten	Aufenthaltsregion COSMO-7 (36 Std.)	Aufenthaltsregion COSMO-EU (36 Std.)
2000 - 10000	18 % (22 %)	59 % (59 %)
1000 - 2000	51 % (45 %)	36 % (39 %)
500 - 1000	21 % (20 %)	3 % (1 %)
0 - 500	11 % (13 %)	2 % (1 %)

**Tab. 6.2:** Aufenthaltsregion der Partikel in den jeweiligen Höhenschichten, nach dem Freisetzen zwischen 1500 und 2500 m, über den gesamten Simulationszeitraum (72 Std.) oder den letzten 36 Std. bis zur Messung.



**Abb. 6.21:** Die berechnete Grenzschichthöhe mit FLEXPART am 02.09.2011 12 UTC mit a) COSMO-7 und b) COSMO-EU.

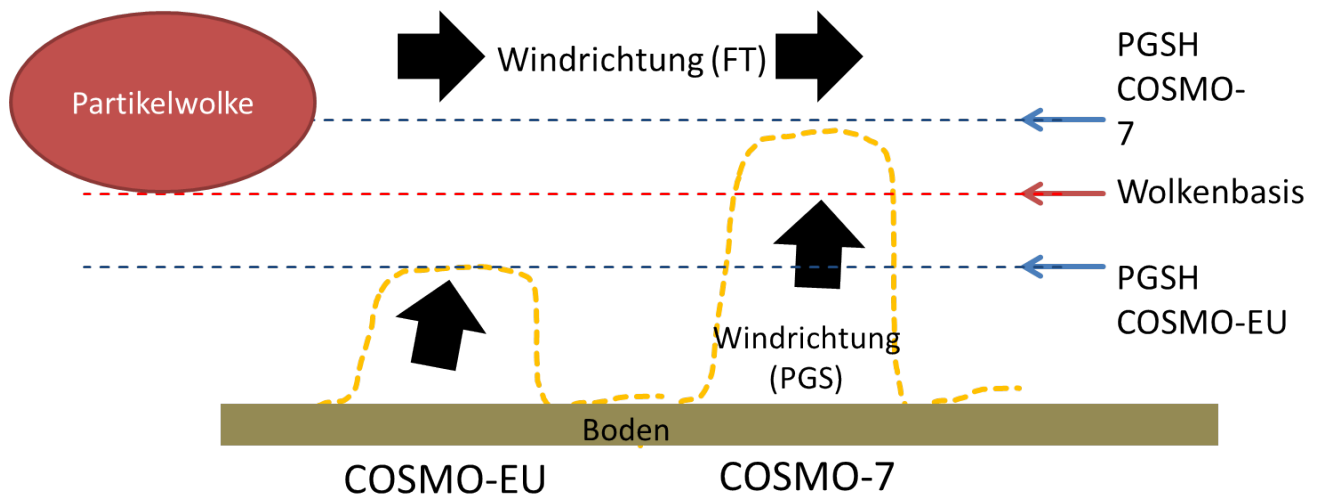
nach Südfrankreich. Der Hauptanteil der Luftmassen verbleibt aber oberhalb der PGS und wird demnach aus Spanien herantransportiert.

Um die beiden Modellergebnisse miteinander vergleichen zu können, werden die relativen Aufenthaltszeiten der Partikel in vier Vertikalschichten (0 – 500, 500 – 1000, 1000 – 2000, 2000 – 10000 m) gegen die Gesamtaufenthaltszeit in allen Schichten für den gesamten Simulationszeitraum (bzw. der letzten 36 Stunden) betrachtet. Obwohl die Partikel in beiden Simulationen in einer Höhe zwischen 1500 und 2500 m freigesetzt wurden, ist die Verteilung sehr unterschiedlich (Tab. 6.2). Während in den Simulationen mit COSMO-7 32 % (33 %) der Partikel unterhalb von 1000 m gefunden werden, sind es mit COSMO-EU nur noch 5 % (2 %). Gemeinsam haben beide Simulationen, dass die Luftmassen möglicherweise auch vom Boden über Spanien stammen könnten. Allerdings sind die Aufenthaltszeiten über Spanien sehr viel geringer als über Frankreich. Es wurde bereits erläutert, dass die beobachtete hohe Partikelanzahlkonzentration nicht in Verbindung mit Wolken stehen kann und dass mit zunehmender Distanz zur Messregion (über 30 Stunden) vermehrt Wolken auf dem Transportweg auftreten. Dies widerspricht der spanischen Herkunft der Luftmassen.

### Ursachen der Abweichung

In Hinblick auf die Verwendung von LPDM zur Untersuchung von Emissionswolken im Katastrophenfall oder zur Auffindung möglicher Quellregionen von Spurengasmessungen ist eine korrekte Berechnung der Aufenthaltszeit besonders in Bodennähe essentiell. Ursachen für die Abweichungen der FLEXPART-COSMO-Versionen können von verschiedenen Faktoren abhängen, wobei im Wesentlichen nur die antreibenden meteorologischen Variablen variiert wurden. Im direkten Vergleich mit den Beobachtungen zeigte sich aber kein großer Unterschied zwischen diesen beiden COSMO-Versionen (vgl. Kapitel 5). Dacre (2010) sowie Angevine et al. (2014) bemerken in ihren aktuellen Studien, dass die meteorologischen Daten eine große Unsicherheit in der Interpretation von LPDM-Simulationen darstellen. Es gilt nun, weitere mögliche Fehlerquellen aus den meteorologischen Daten zu unterscheiden: a) großskalige Anströmung, b) Position der Warmfront, c) Grenzschichtparametrisierung, d) Grenzschichthöhe.

Als Erstes wird untersucht, ob a) einen Einfluss auf die unterschiedlichen Ergebnisse der beiden FLEXPART-COSMO-Versionen hat. Allerdings zeigen die Simulationen beider Modelle das gleiche Ergebnis (Luftmassen aus Südwesten), wenn die Partikel in den gleichen Höhen verteilt sind. Dazu wurde ein weiterer Sensitivitätstest durchgeführt, in dem die Höhe der Partikelfreisetzung variiert wurde. Bei einer Freisetzungshöhe von 2000 – 3000 m verschwinden die Aufenthaltszeiten am Boden der COSMO-EU-Simulationen über Deutschland und Frankreich komplett, während in Simulationen mit COSMO-7 kaum Veränderungen zu beobachten sind (nicht gezeigt). Weder die Veränderung des Zeitraums noch des Ortes der Partikelfreisetzung ergab vergleichbare Ergebnisse zwischen den COSMO-EU- und COSMO-7-Simulationen, sodass b) keinen großen Unterschied aufweist. Des Weiteren wurden noch verschiedene interne Parameter in FLEXPART variiert (z. B. die Konvektionsparametrisierung), um den Einfluss von c) zu untersuchen. Wieder kann kein Unterschied zum bisherigen Ergebnis gefunden werden.



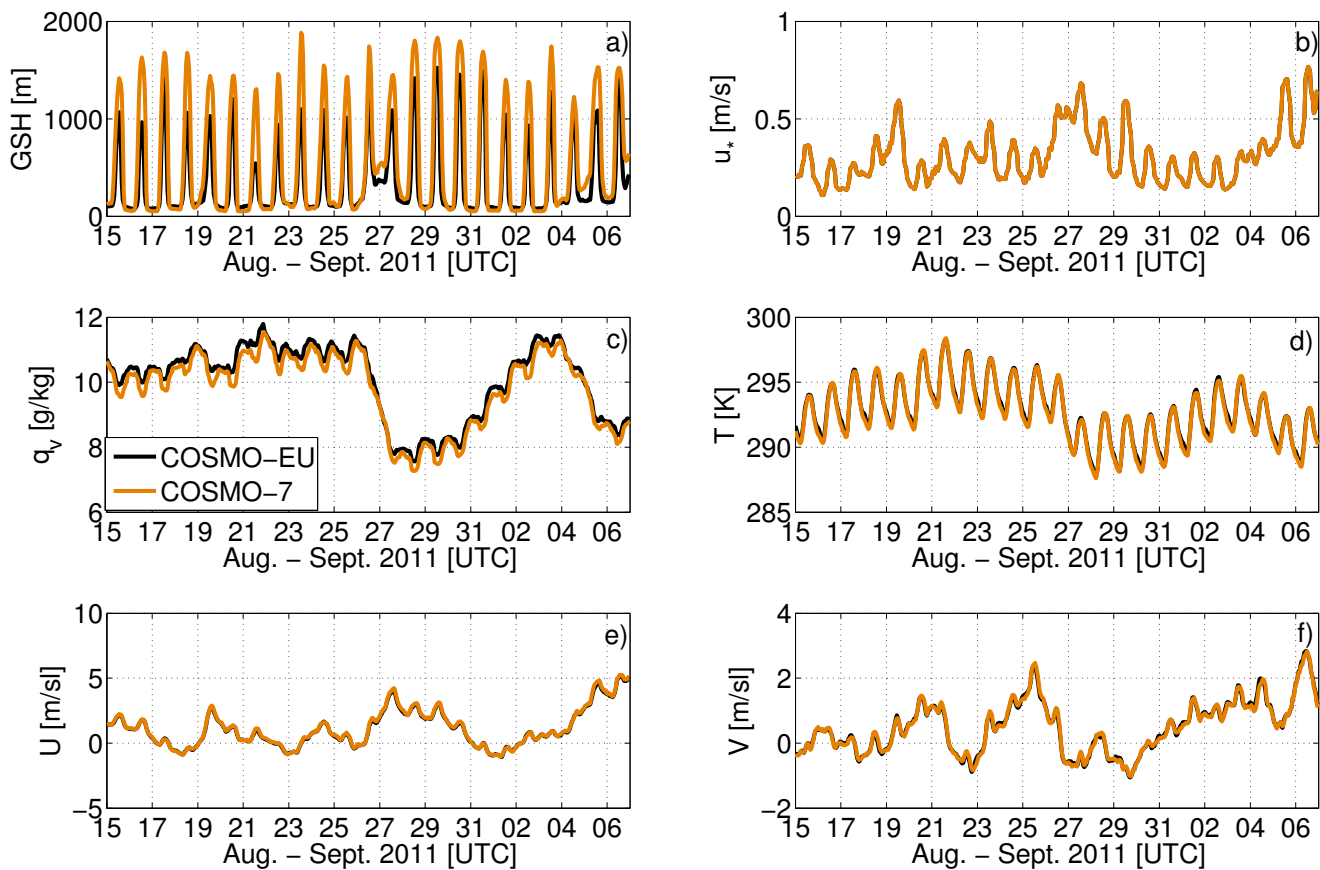
**Abb. 6.22:** Schematische Darstellung der Interaktion einer Partikelwolke unter Berücksichtigung der Grenzschichthöhe.

Eine entscheidende Größe könnte die von FLEXPART berechnete  $d$ ) mit COSMO-7 und COSMO-EU sein, und nach Geels et al. (2007) ist dies ein großer Unsicherheitsfaktor in Ausbreitungsstudien. Abbildung 6.21 zeigt die PGSH von einem Ausschnitt Mitteleuropas für den 02.09.2011 12 UTC für beide Modelle. Die mittlere PGSH für das dargestellte Gebiet liegt für COSMO-7 bei  $1252 \pm 128$  m und für COSMO-EU bei  $790 \pm 63$  m. In Anbetracht dieses Ergebnisses ist es möglich, dass die berechnete PGSH zu den unterschiedlichen Ergebnissen führt; siehe schematische Darstellung in Abbildung 6.22. In dieser Skizze wird vorausgesetzt, dass die Windrichtung und -geschwindigkeit in beiden Modellen sowohl in der PGS als auch in der FT identisch sind. Wenn nun eine kompakte Partikelwolke mit einer Basishöhe zwischen den Grenzschichthöhen beider Modelle eingetragen wird, dann wird diese Wolke in COSMO-EU keine Interaktion mit der PGS haben und nur den Windfeldern in der FT folgen, während die Wolke in COSMO-7 mit der PGS interagiert und die Partikelwolke in zwei Teile aufspaltet. Demnach führt die erhöhte PGSH zu einer größeren Interaktion mit der Partikelwolke; dieser Fakt erlaubt zumindest eine Interpretation der Ergebnisse.

Die Berechnung der PGSH wird in FLEXPART mit dem Bulk-Richardson-Schema (Gleichung [3.1]) bestimmt, wobei ein kritischer Schwellenwert von  $RI_C = 0.25$  für den Übergang von turbulenter in eine laminare Schichtung gesetzt ist. Neben den bekannten Variablen ( $T, U, V, q_v$ ; vgl. Kapitel 4) wird unter anderem noch die Variable  $u_*$  zur Berechnung von  $RI_B$  verwendet. Die letztere Variable wurde für den Vergleich in Kapitel 4 wegen fehlender Beobachtungen nicht berücksichtigt.

Die oben genannten Variablen werden in einem Gebiet über Mitteleuropa auf dem ersten Modellniveau über der Topographie für den kompletten Zeitraum während der Messkampagne PARADE für beide Modelle gemittelt. Das Gebiet umfasst Mittel- und Süddeutschland, Teile von Ostfrankreich und der Schweiz und Teile von Belgien bzw. den Niederlanden (vgl. Abb. 6.21). Eine Interpolation beider Modelle auf ein einheitliches Gitter hätte einen zusätzlichen systematischen Fehler gebracht und wäre auf Kosten des höher aufgelösten Modells gegangen. Deswegen werden die verschiedenen Variablen in einem einheitlichen Modellgebiet (7500 Gitterpunkte für COSMO-7 und rund 7300 Gitterpunkte für COSMO-EU) für die Berechnung von Mittelwerten pro Zeitschritt verwendet.

Abbildung 6.23 zeigt die Zeitreihen der gemittelten Variablen, und in Abbildung 6.24 ist die Korrelation der Differenz von COSMO-7 und COSMO-EU der verschiedenen Variablen gegen die Differenz der PGSH dargestellt. In beiden Abbildungen ist die eindeutige Differenz der PGSH ersichtlich. Dabei zeigen sich keine eindeutigen Abhängigkeiten der Variablen  $T, U, V$ , und  $u_*$  von der Grenzschichthöhendifferenz. Im Gegensatz dazu zeigt  $q_v$  sowohl in der Zeitreihe (Abb. 6.23c) als auch in der Korrelation (Abb. 6.24a) eine mögliche Abhängigkeit von der PGSH-Differenz. Aufgeteilt in Tages- (06–18 UTC) bzw. Nachtwerte (18–06 UTC) zeigen die Tageswerte eine deutliche Antikorrelation von  $r = -0.50$ . Allerdings trifft es nicht immer zu, dass eine große Feuchtedifferenz auch eine große PGSH-Differenz hervorbringt.

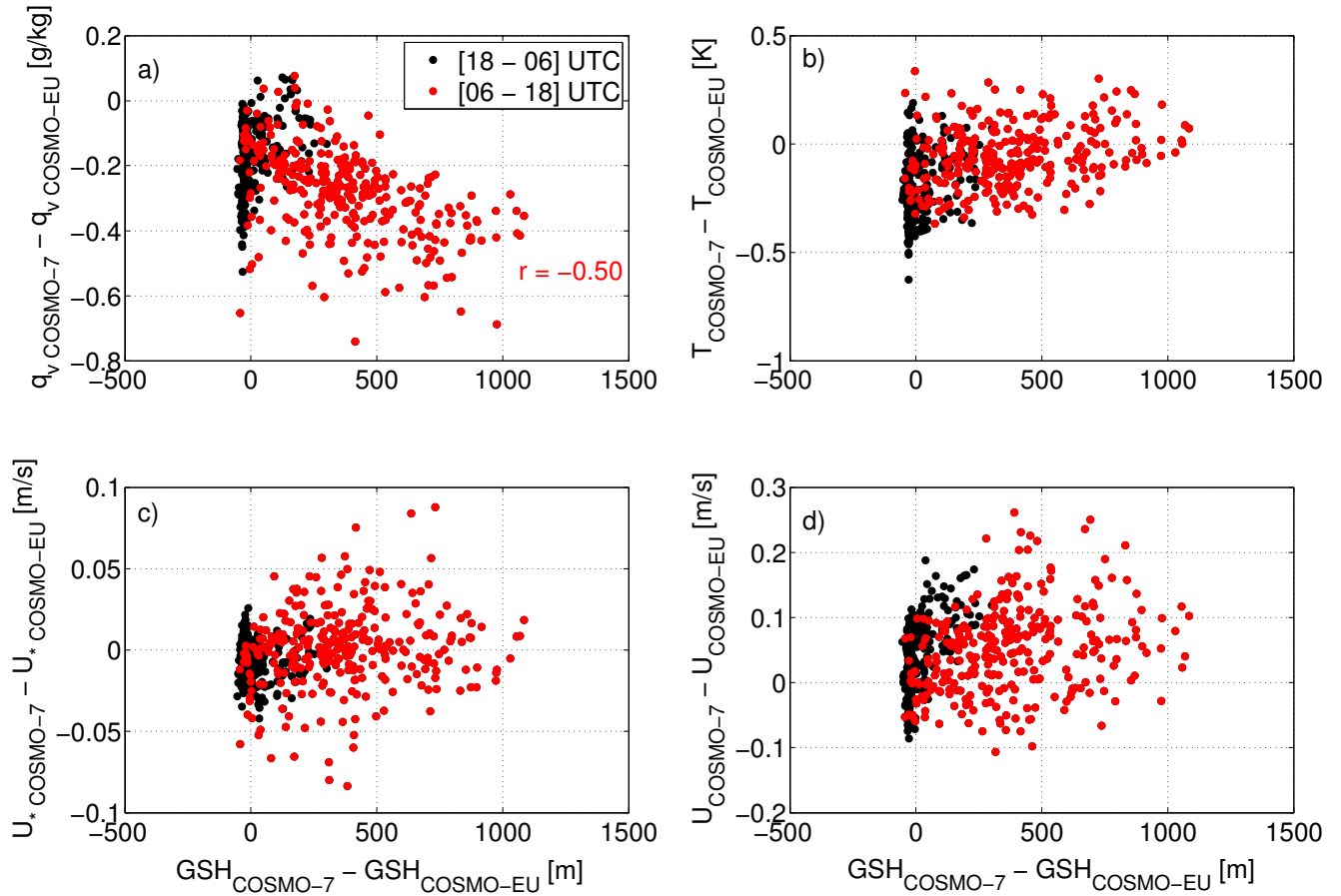


**Abb. 6.23:** Zeitreihen von COSMO-7 (orange) und COSMO-EU (schwarz): a) Grenzschichthöhe basierend auf FLEXPART, b)  $u_*$ , c)  $q_v$ , d)  $T$ , e)  $U$ , f)  $V$ . Deutliche Differenzen sind in der Grenzschichthöhe und spez. Feuchte zu erkennen.

Die Feuchte scheint daraus folgernd einen wichtigen Einfluss auf die PGSH zu haben, wobei die Feuchte auf dem ersten Modellniveau auch von der Bodenfeuchte (engl. soil moisture) abhängig ist. Die Bodenfeuchte ist dabei eine wichtige Größe, da sie den sensiblen Wärmefluss (Erwärmung der Grenzschicht) und latenten Wärmefluss (Befeuchtung der Grenzschicht) durch die solare Einstrahlung beeinflusst.

Neben der unterschiedlichen Umsetzung der Physik in den beiden COSMO-Versionen spielt die Assimilierung der Beobachtungsdaten eine Rolle bezüglich der Feuchtedifferenzen. Zum Beispiel wird seit 2008 vom Deutschen Wetterdienst die SMA-Methode (engl. soil-moisture-analysis) im COSMO-EU verwendet, um die Vorhersage für die 2-Meter-Temperatur nach 12 Uhr zu verbessern. Dazu wird künstlich die Bodenfeuchte konstant gehalten und damit der latente Wärmefluss durch Verdunstung erhöht. Dieser unphysikalische Prozess hat allerdings einen starken Effekt auf die bodennahe Temperatur, auf die Partitionierung der Wärmeflüsse und somit auch auf die resultierende PGSH (u. a. Kumar et al., 2006; Chen et al., 2007; LeMone et al., 2008; Koster et al., 2010). Mit der weiteren Verbesserung der Assimilation der Beobachtungsdaten (Runge-Kutta-Schema) ist zumindest der negative Effekt auf die Temperatur verschwunden. Interessanterweise wurden vom DWD seit 2005 keine Vergleiche zwischen der modellierten und der beobachteten PGSH mit den neueren COSMO-Versionen durchgeführt (persönliche Korrespondenz mit M. Raschendorfer, B. Fay, DWD). Der letzte bekannte Vergleich der PGSH zwischen COSMO-EU und Beobachtungen wurde von Baars et al. (2008) im Jahr 2008 durchgeführt. Deutliche Differenzen von bis zu 20% wurden zur beobachteten PGSH gefunden, aber die möglichen Ursachen wurden nicht weiter untersucht.

Auch das Schweizer Wetterinstitut zeigt in neueren Studien (unveröffentlicht), dass die beobachtete PGSH von der Messstation in Payerne/Schweiz nicht mit den Grenzschichthöhen der COSMO-Versionen (COSMO-7, COSMO-2) übereinstimmen. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass die PGSH in COSMO-7 überschätzt wird (persönliche Korrespondenz mit P. Kaufmann (MeteoSwiss) und D. Brunner (EMPA)).



**Abb. 6.24:** Korrelationen zwischen den Differenzen (COSMO-7 und COSMO-EU) von a)  $q_v$ , b)  $u_*$ , c)  $T$ , d)  $U$  gegen die Differenz der Grenzschichthöhe beider Modelle. Die Farben zeigen Tages- (06 - 18 UTC) bzw. Nachtwerte (18 - 06 UTC) an. Die Differenzen zwischen der  $q_v$  und der PGSH zeigen eine eindeutige Antikorrelation am Tag an.

Eine mögliche Erklärung könnte in der Limitierung der Turbulenzlänge (engl. turbulence length scale) auf einen maximalen Wert sein. Dies hat zur Folge, dass gerade in den Sommermonaten bei größerer thermischer Turbulenzgenerierung die Durchmischung der Temperatur in Bodennähe nicht mehr vollständig ist und letztendlich zu höheren Temperaturen von rund 1–2 K führt (persönliche Korrespondenz P. Kaufmann, MeteoSwiss).

Eine einfache Lösung für die Problematik der Grenzschichthöhendifferenz in beiden Modellen kann also nicht angegeben werden. Interessant wären Modellstudien, die in COSMO-7-Simulationen auch die Feuchte künstlich erhöhen, wie dies in COSMO-EU durchgeführt wird. Zu beachten ist, dass bei veränderten Simulationen auch andere Größen verändert werden können; z. B. zeigen Simulationen mit einem trockeneren Boden, dass die lokalen Windfelder besser mit den Beobachtungen in komplexen Berg-Tal-Regionen übereinstimmen (Szintai et al., 2010).

## 6.4 Zusammenfassung und abschließende Bewertung

Während der Messkampagne PARADE wurde die Luftmassenzusammensetzung um den KF innerhalb von 12 Flugstunden an drei Tagen vermessen. Neben meteorologischen Variablen, wie Temperatur und spez. Feuchte, wurden die Spurengase  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$  und  $\text{O}_3$  und die Partikelanzahlkonzentration in der PGS und in der FT bis in 3 km Höhe bestimmt.

Die Flugtage finden alle während einer Hochdruckwetterlage statt, aber unter unterschiedlichen großskaligen Anströmungen. Aus der mittleren Vertikalverteilung der Spurengase wurde eine Luftmasse (02.09.2011)

in der FT identifiziert, die deutlich von den anderen Flugtagen abweicht. Diese Luftmasse zeigt eindeutig ehemalige Grenzschichtsignaturen mit einer erhöhten Partikelanzahlkonzentration, reduziertem  $O_3$  und reduziertem  $CO_2$  im Vergleich zu den anderen Profilen. Anhand der lokalen Atmosphärenbedingungen konnte gezeigt werden, dass die beobachteten Luftmassen nicht lokal gehoben, sondern durch Ferntransport zur Messregion getragen wurden. Sowohl mit rein kinematischen Trajektorien als auch mit dem LPDM FLEXPART-COSMO-7 konnte gezeigt werden, dass diese Luftmassen am wahrscheinlichsten aus der ehemaligen PGS über Ost- und Südfrankreich stammen. Auch der Hebungsprozess in Form einer Warmfront, welche Stunden zuvor die Messregion überquerte, gilt als relativ plausibel. Somit scheint der Ursprung der beobachteten Luftmasse durch die Kombination von Beobachtungen, Transportstudie und Wetterlage geklärt. Doch all diese Ergebnisse basieren auf den meteorologischen Variablen von COSMO-7. Untersuchungen dieses Transportprozesses mit der COSMO-EU-Version bestätigen nicht die vorhergehenden Ergebnisse, dass diese Luftmassen aus Ost- oder Südfrankreich stammen, sondern legen nahe, dass die Luftmassen eher aus Spanien oder sogar fernerer Regionen stammen.

Unterschiede zwischen den COSMO-Versionen wurden in der PGSH und der bodennahen Feuchte gefunden. Dabei ist die PGSH in COSMO-7 stets höher als in COSMO-EU; gleichzeitig ist die Feuchtedifferenz größer. Da die Wärmefflüsse in beiden Modellen durch die unterschiedliche Feuchte verschieden partitioniert werden, kann die Feuchte somit das Grenzschichtwachstum beeinflussen. Dieses Ergebnis wird in aktuellen Studien nachverfolgt und scheint sich zu bestätigen (pers. Korres., D. Brunner (EMPA)).

Abschließend ist festzuhalten, dass die Ergebnisse aus den COSMO-7-Daten, trotz der meteorologischen Unsicherheit die größten Übereinstimmungen mit der Wetterlage vorweisen und die Messungen plausibel erklären. Hebung von Luftmassen aus fernerer Regionen als dem Rheintal steht im Widerspruch zu den beobachteten hohen Partikelanzahlkonzentrationen in der FT, da der Wolkenanteil mit zunehmendem Abstand zur Messregion zunimmt und eine Senke für hohe Partikelanzahlkonzentrationen darstellt.

Dieses Fallbeispiel zeigt, dass mehrere meteorologische Modelle dabei helfen können, die Messdaten zu interpretieren und meteorologische Unsicherheiten zu minimieren. Gerade die PGSH ist in Ausbreitungsstudien eine wichtige Variable, und Differenzen zwischen Simulationen und Beobachtungen können zu großen Unsicherheiten führen (Gerbig et al., 2008; Kretschmer et al., 2012). Auch wenn der Vergleich der PGSH und den meteorologischen Variablen (Temperatur, Feuchte, Wind) zwischen Beobachtungen und Modellen lokal gute Übereinstimmungen zeigt (vgl. Kapitel 5), muss dies nicht für das gesamte Modellgebiet gelten und sollte mit weiteren Beobachtungsdaten überprüft werden.



# Kapitel 7

## Einmischung von der freien Troposphäre in die planetare Grenzschicht

In diesem Kapitel werden einzelne dynamische Prozesse, die zu einem direkten Austausch zwischen den Luftmassen in der planetaren Grenzschicht (PGS) und der freien Troposphäre (FT) führen, untersucht. Dazu werden die Spurengase  $\text{CO}_2$  und  $\text{O}_3$ , basierend auf der Tracerkorrelationstechnik, miteinander korreliert, um Mischung zwischen den beiden Luftmassen zu bestimmen.

### 7.1 Einführung

Zur Untersuchung der dynamischen Grenzschichtprozesse mit Spurengasmessungen wird die Grenzschichtentwicklung in Verbindung mit den Spurengasmessungen an einem Tag (06.09.2011) der Messkampagne analysiert.

Abbildung 7.1 zeigt den Tagesgang der planetaren Grenzschicht (PGS) bestimmt aus den Radiosonden. Die berechnete Bulk-Richardson-Zahl gibt an, dass die PGS turbulent und instabil ist, während die oberhalb liegende freie Troposphäre (FT) stabil geschichtet ist. Diese Eigenschaften der PGS und die Bestimmung der Grenzschichthöhe (PGSH) wurden bereits in Abbildung 4.5 für den Zeitpunkt 14 UTC gezeigt. Mit verschiedenen Methoden konnte die PGSH auf  $1981 \text{ m} \pm 50 \text{ m}$  bestimmt werden. Der Übergang von der PGS zur FT zu dieser Zeit wird begrenzt durch eine scharfe Temperaturinversion von rund 10 K. Die PGSH um 11 UTC liegt bei 1640 m mit einer Inversionsstärke von rund 3 K (nicht gezeigt). Das Anwachsen der PGS und die Verstärkung der Temperaturinversion mit der Zeit sorgen einerseits zur Einmischung von Luftmassen aus der FT in die PGS, andererseits bewirkt großskalige Subsidenz eine Verstärkung der Inversionsschicht und limitiert das weitere Grenzschichtwachstum und somit die Einmischung (Arya, 2001).

Am Morgen wird neben der PGSH eine weitere Inversionsschicht in ca. 2000 bis 2300 m ermittelt. Diese markiert die Residualschichthöhe (RSH) und entspricht auch nahezu der Höhe der Aerosolschicht (bzw. Wolkenbasis, blaue Kreise) aus den Rückstreuprofilen des Ceilometers. Gegen 10 bis 11 UTC (= 12 bis 13 Uhr lokale Zeit) kommt es zu einer Vereinigung der neu anwachsenden PGSH und dieser Residualschicht. Vor und nach dieser Vereinigung wurde die vertikale Luftmassenzusammensetzung mit zwei Flügen vermessen. Basierend auf dieser Ausgangslage sollen folgende Fragen beantwortet werden:

- Lässt sich Mischung zwischen den Spurengasen nach der Vereinigung der beiden Schichten bestimmen?
- Können die verschiedenen dynamischen Prozesse (Einmischung, Konvektion, Advektion) anhand der Spurengasprofile identifiziert werden?
- Welchen Einfluss übt der Ferntransport auf die Luftmassenzusammensetzung aus?
- Wie werden die Spurengasprofile durch Wolken modifiziert?

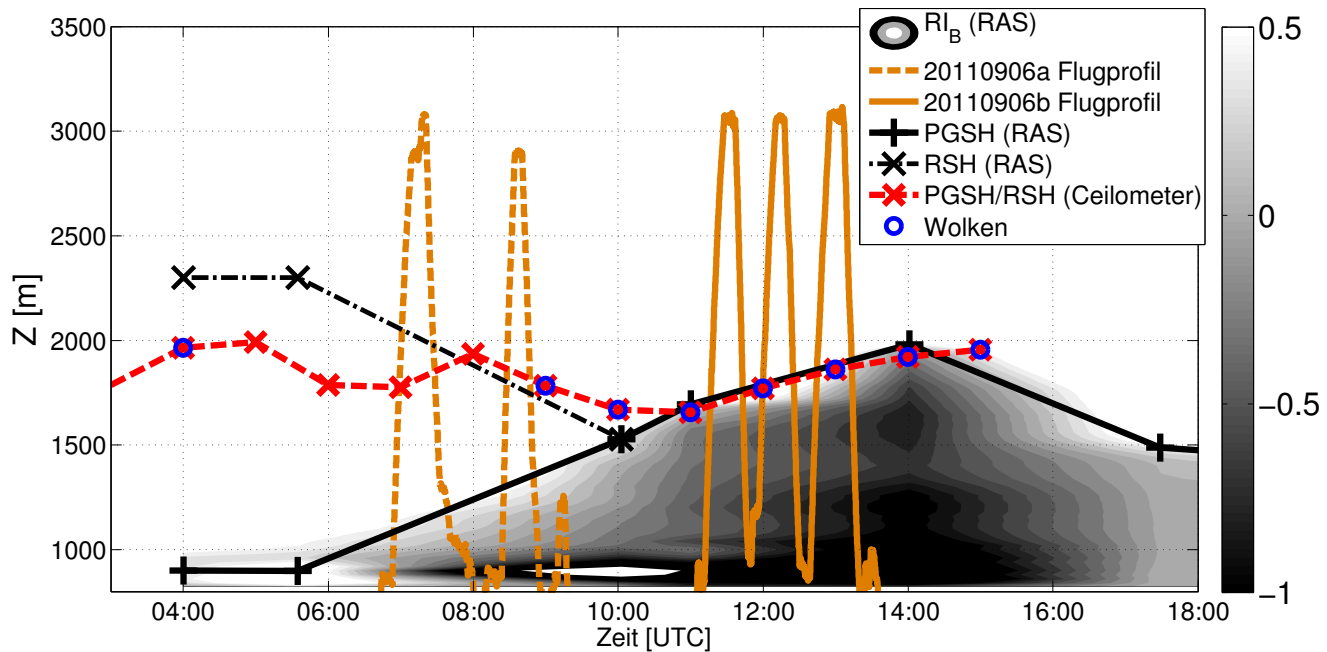


Abb. 7.1: Tagesgang der detektierten PGSH mit Radiosonden (schwarz) und dem Ceilometer (rot, stündlich gemittelt). Die Abgrenzung zwischen der turbulenten Grenzschicht und der stabilen FT ist mit der Bulk-Richardson-Zahl  $RI_B$  (grau schattiert) dargestellt. Die Höhe der Residualschicht (RS) wurde subjektiv mit Radiosonden (schwarz gestrichelt) und dem Ceilometer (rot) bestimmt. Wolken sind zu den verschiedenen Zeitpunkten eingezeichnet. Die Zeiträume der Flugprofile (orange) und Wolken (blaue Kreise) sind zusätzlich eingetragen.

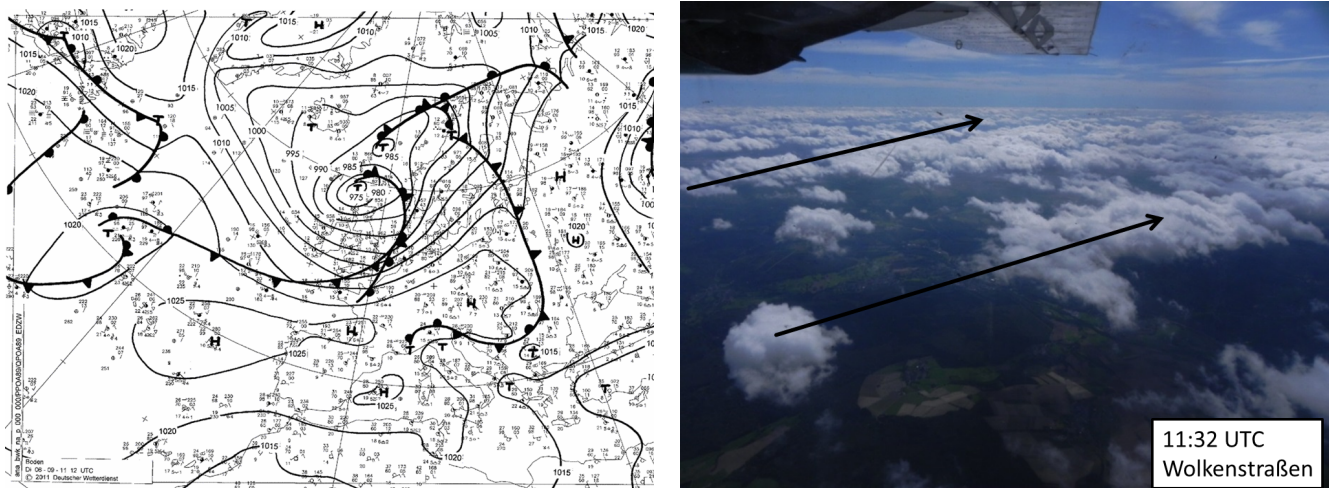
## 7.2 Beobachtungen und Datenbasis

### Wetterlage

Am 06.09.2011 liegt die Messregion in einer präfrontalen flachen Hochdruckzone mit zyklonalem Einfluss im Norden Europas und antizyklonalem Einfluss im Süden (Abb. 7.2). Diese Großwetterlage sorgt für hohe Windgeschwindigkeiten (vgl. Abb. 4.5) über Mitteleuropa, wobei die Luftmassencharakteristik vom Atlantik bestimmt ist (vgl. Abb. 6.2). In einer Hochdruckzone hinter einer Kaltfront ist häufig eine ausgeprägte Inversionsschicht zu beobachten, die im Zusammenhang mit dem Absinken und der Advektion kühlerer Luftmassen steht. Dies kann zu eindrucksvollen organisierten Wolkenformationen führen, den Wolkenstraßen (Abb. 7.2). Die Zugbahn der Wolkenstraßen ist dabei eng an die Ausrichtung der Isobaren geknüpft und auch auf Satellitenaufnahmen (nicht gezeigt) zu erkennen. Diese organisierten Strömungssysteme entstehen durch Konvektion und thermischen Instabilitäten in Wolkennähe (Etling and Brown, 1993), tragen zusätzlich im hohen Maße zur vertikalen Umverteilung bei und können auch die Durchmischung und den Austausch mit der FT prägen (Liu et al., 2008).

### Zeitreihen der Flugzeugmessung

Abbildung 7.3 zeigt die Zeitreihen von  $CO_2$ ,  $O_3$ ,  $CO$ ,  $q_v$ , Partikelanzahlkonzentration ( $N_{CPC}$  und  $N_{OPC}$ ), Höhe und  $\theta$  für den letzten Flug 20110906b am 06.09.2011. Es sind dabei eine klare Antikorrelation zwischen  $CO_2$  und  $CO$  sowie  $O_3$  und  $q_v$ , wie auch ein klarer Gradient der Spurengase bei rund 2000 m zu erkennen (Tab. 7.1). Auffällig ist die Differenz zwischen der Partikelanzahlkonzentration der CPC- (Partikeldurchmesser ab 20 nm) und OPC-Messungen (ab 250 nm) zugunsten der kleineren Partikel. Da im Messgebiet Wolken aufgetreten sind (Abb. 7.2) und Partikel ab einer Größe von 100 nm zu 100% als Wolkenkondensationskeime aktiviert werden können (Seinfeld and Pandis, 1997), ist es sehr wahrscheinlich, dass die Differenz dadurch zustande kommt.



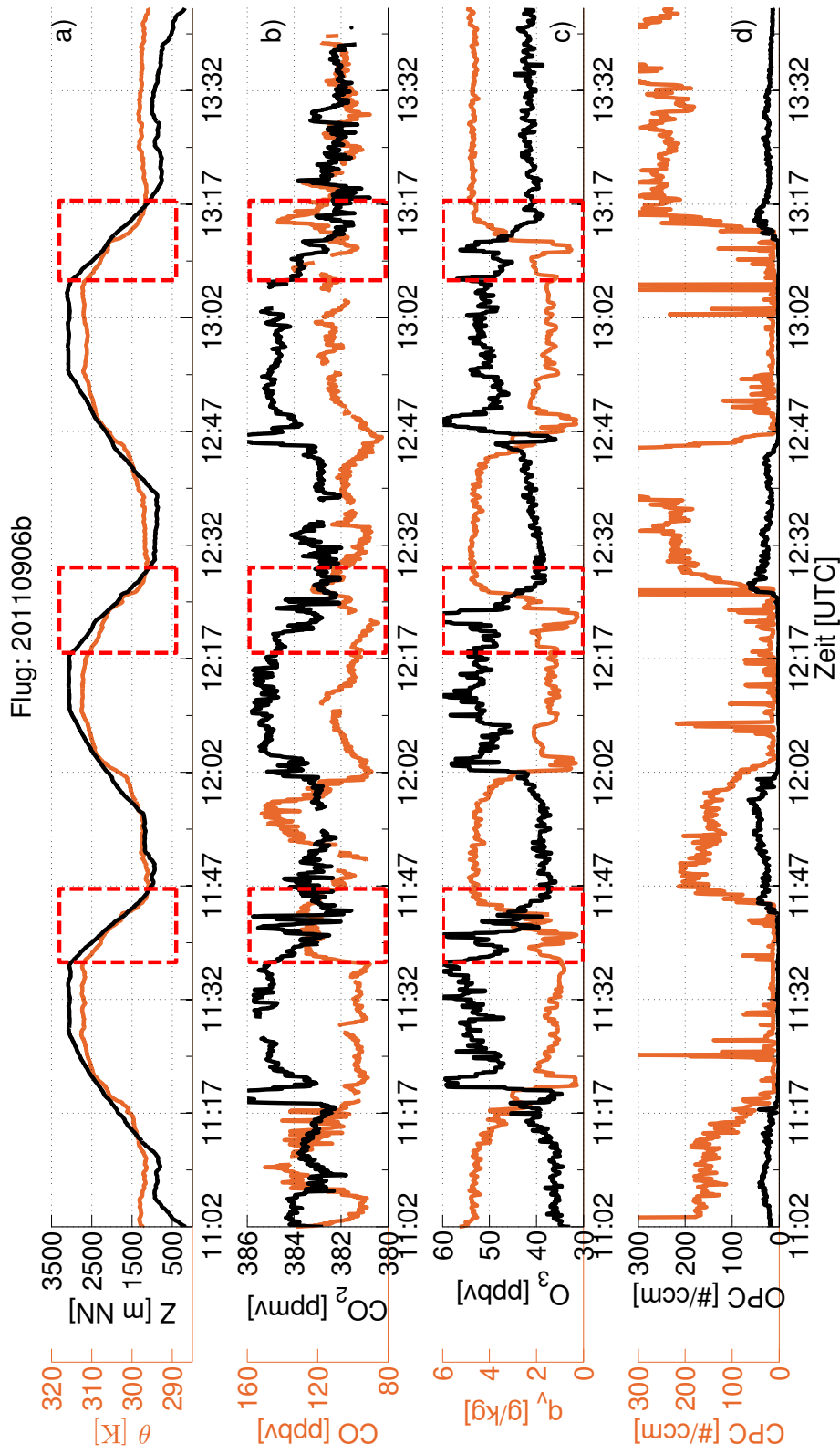
**Abb. 7.2:** Links: Bodendruckkarte des Deutschen Wetterdienstes vom 06.09.2011 12 UTC. Rechts: Aufnahme der Wolkenformation aus dem Flugzeug um 11.32 UTC. Die Pfeile geben die Zugbahn der Wolkenstraßen an.

Flughöhe	≤2000 m	>2000 m
CO <sub>2</sub> [ppmv]	382	385
O <sub>3</sub> [ppbv]	40	55
q <sub>v</sub> [gkg <sup>-1</sup> ]	4	2
CO [ppbv]	120	90
N <sub>CPC</sub> [#ccm <sup>-1</sup> ]	200	≤ 5

**Tab. 7.1:** Mittlere Zusammensetzung der Luftmassen oberhalb und unterhalb von 2000 m über NN.

### Vertikalprofile

Zur weiteren Analyse der Vertikalstruktur der Spurengase werden aus den Zeitreihen (Abb. 6.6 und 7.3) alle Messungen zwischen 1000 und 3000 m über dem Kleinen Feldberg (KF) herausgefiltert. Jedes Vertikalprofil wurde in einem Zeitraum von ca. 10 Minuten vermessen, sodass eine mittlere Vertikalauflösung von 3 bis 4 m vorliegt. Um die Daten miteinander korrelieren zu können, wird jedes Vertikalprofil auf ein einheitliches Vertikalgitter mit 10 m Auflösung linear interpoliert.



**Abb. 7.3:** Zeitreihen von a)  $\theta$  und der Höhe, b)  $\text{CO}_2$  und  $\text{CO}$ , c)  $\text{O}_3$  und  $q_v$ , d)  $N_{OPC}$  und  $N_{CPC}$  des Fluges 20110906b. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert.

### 7.3 Experimenteller Nachweis von Mischung

Zusammenhänge (Korrelationen) zwischen  $O_3$  und anderen Spurengasen werden häufig verwendet, um Mischung zwischen verschiedenen Luftmassen zu untersuchen, Ozonproduktion zu quantifizieren oder um die Herkunft der Luftmasse genauer zu erschließen. Dies wurde unter anderem exzessiv auf die Grenzflächen zwischen der Stratosphäre und Troposphäre angewendet (u. a. Hoor, 2002). Für alle Spurengase innerhalb der Grenzschicht gilt allgemein eine lokal homogene Verteilung durch die Turbulenz, wobei die Wechselwirkung mit der Biosphäre als auch unterschiedliche advehierte Luftmassen zu einer Veränderung des Mischungsverhältnisses führen können. Auch die chemische Signatur einer Luftmasse in der freien Troposphäre ist relativ konstant, wenn diese auch nicht durch unterschiedliche Quellen oder andere äußere Einflüsse (Konvektion) beeinflusst wird.

Die Korrelation dieser klar separierten Luftmassen mit unterschiedlicher chemischer Signatur wird eine klare Abgrenzung aufzeigen. Mögliche Mischung zwischen diesen Luftmassen würde sich dann durch die Bildung einer Mischungsgeraden darstellen. Dieses Konzept wurde, soweit bekannt, bisher nur in der Arbeit von Neuman et al. (2012) gezeigt. Dies ist die erste Studie, die sich explizit mit der Korrelation zwischen  $CO_2$  und  $O_3$  befasst, um Mischung zwischen der PGS und der FT zu erfassen. Abbildung 7.4 zeigt die Korrelation zwischen  $CO_2$  und  $O_3$  für die Messungen gegen 11:42 UTC am 06.09.2011. Die Verteilung der Mischungsverhältnisse von Ozon / ( $CO_2$ ) / [ $q_v$ ] in der PGS (0–1640 m) variiert um rund 35 ppbv / (382–384 ppmv) / [4–6 gkg<sup>-1</sup>] und in der FT (ab 2200 m) um die 60 ppbv / (383–385 ppmv) / [~1-2 gkg<sup>-1</sup>].

Eine direkte Mischung zwischen diesen Luftmassen würde sich in einer Verbindungslinie mit positivem Korrelationskoeffizienten zeigen. Allerdings bilden die restlichen Datenpunkte zwischen der PGS und der FT, eine Linie mit einem negativen Korrelationskoeffizienten von  $r = -0.84$ . Die spez. Feuchte auf dieser Linie variiert dabei um rund 2 bis 3 gkg<sup>-1</sup>. Falls diese Luftmasse durch Mischung entstanden ist, müssen die Mischungspartner an den jeweiligen Enden zu suchen sein, wenn von einer linearen Mischungsgeraden ausgegangen wird.

Die unterschiedlichen Korrelationen der Spurengase vor 11:42 UTC (Abb. 7.5, links) und nach 11:42 UTC (Abb. 7.5, rechts) deuten darauf hin, dass die beobachtete Linie wahrscheinlich aus einem lokalen Mischungsprozess entstanden ist. Die Korrelation der Spurengase um 7:27 UTC (Abb. 7.5, links) zeigt noch keine Mischungslinie. Außerdem ist die Verteilung in der FT zur späteren Korrelation nahezu unverändert – ein Indiz für eine konstante Anströmung in der FT. Die chemischen Signaturen der Luftmassen in der Residualschicht (vgl. Abb. 7.1) weisen niedrigere  $O_3$ - und  $CO_2$ -Werte auf, als in der späteren Korrelation in gleicher Höhe. Interessanter ist die chemische Signatur der Luftmassen innerhalb der stabilen Schicht (SBS) unterhalb von 800 m.

Sie sind deutlich separiert von der darüber liegenden Schicht und weisen hohe  $CO_2$ - und niedrige  $O_3$ -Mischungsverhältnisse auf. Diese chemische Signatur der Luftmasse in der SBS weist eine ähnliche Zusammensetzung auf wie das untere Ende der Mischungslinie um 11:42 UTC. Somit ist es sehr wahrscheinlich, dass diese Luftmasse sich mit der Luftmasse in der FT vermischt und die beobachtete Mischungslinie bildet. Die Korrelation von  $CO_2$  und  $O_3$ , 90 Minuten nach der beobachteten Mischungslinie, ergibt wiederum keine Mischungslinie mehr (Abb. 7.4). Die chemische Signatur in der FT ist unverändert zu den vorherigen Messungen, und die Zusammensetzung in der PGS ist deutlich kompakter als in den vorherigen Darstellungen.

Was passiert mit der Mischungslinie nach 11:42 UTC? Zum einen kann die turbulente Mischung innerhalb der PGS zu einer irreversiblen Vermischung der Spurengase führen. Zum anderen könnte die Luftmasse mit der Mischungslinie auch mit dem Windfeld aus der Messregion abtransportiert worden sein. Leider erlaubt der weitere Datensatz keine spezifischere Schlussfolgerung.

In den folgenden Unterabschnitten wird der Entstehungsprozess zur Mischungslinie weiter diskutiert wie auch die Frage, ob die unterschiedliche Luftmassenzusammensetzung nicht durch unterschiedliche Quellen im Ferntransport beeinflusst worden sein könnte.

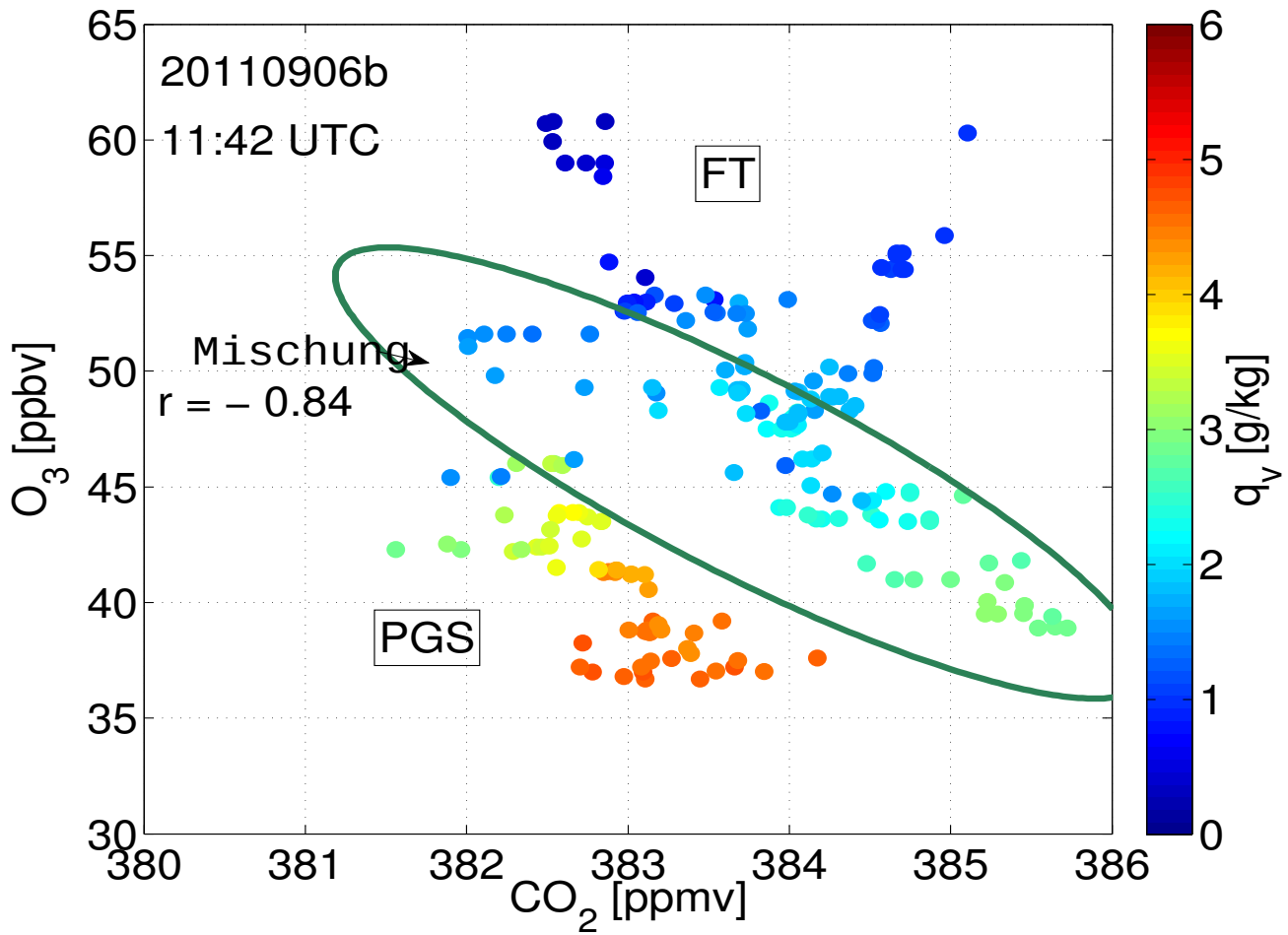


Abb. 7.4: Messungen von  $CO_2$  gegen  $O_3$ , während das Flugzeug gegen 11:42 UTC spiralförmig von der freien Troposphäre (FT) in die Grenzschicht (PBL) über dem KF flog. Die Datenpunkte innerhalb der Ellipse liegen zwischen 1640 und 2200 m und entstehen durch Mischung. Die spezifische Feuchte markiert Luftmassen in der PBL ( $> 4$  g/kg) und FT ( $< 2$  g/kg).

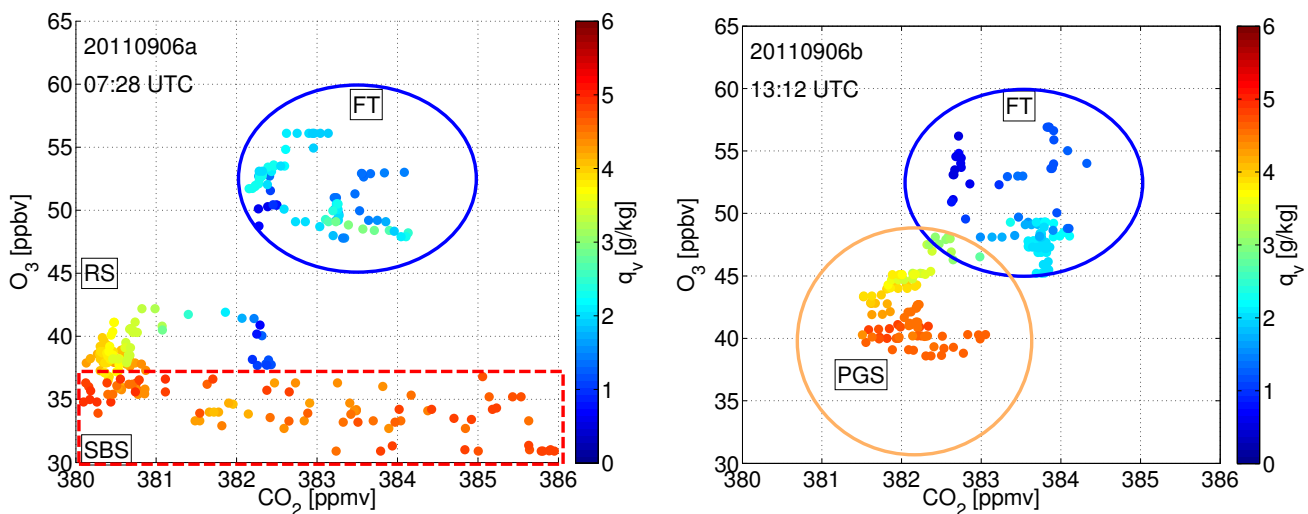
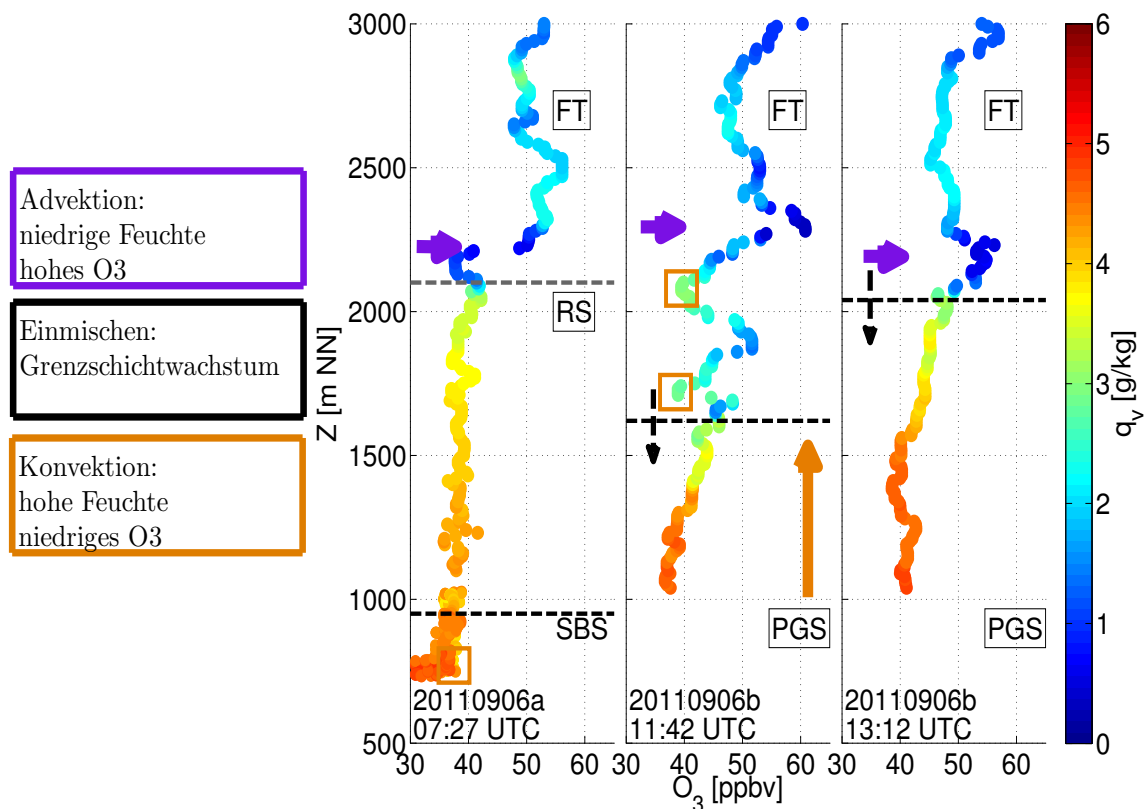
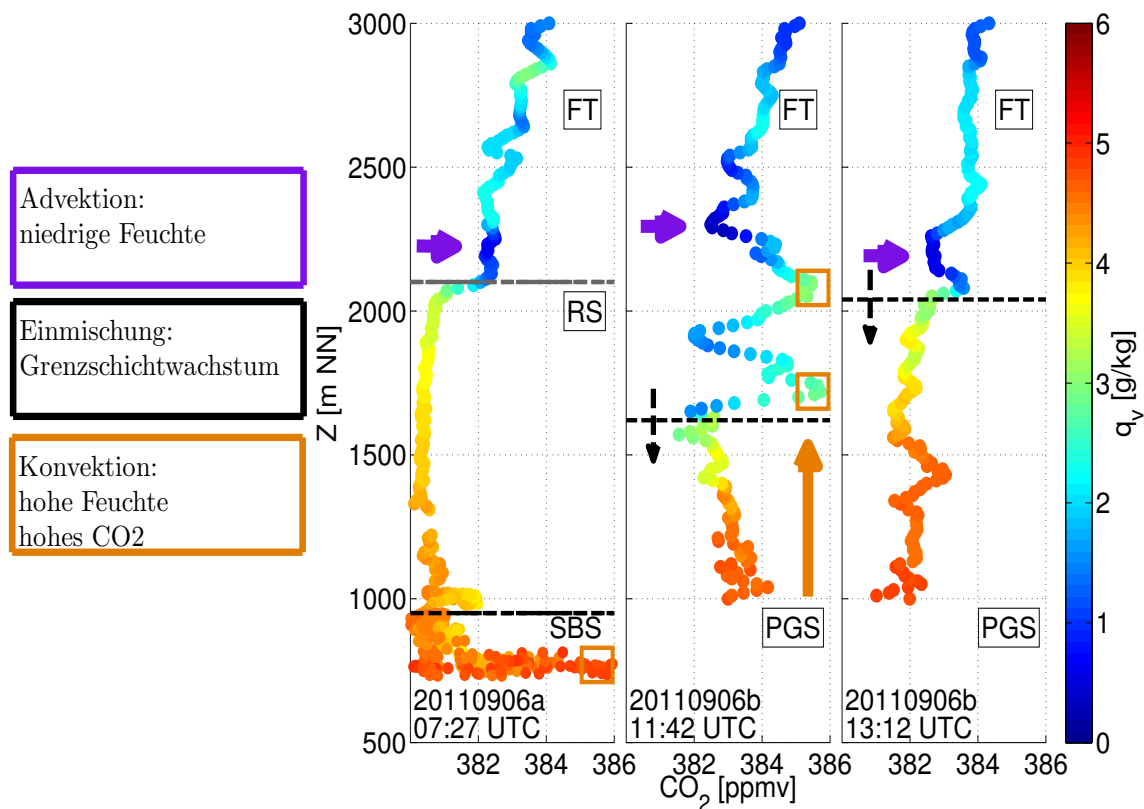


Abb. 7.5: Wie Abbildung 7.4. Links: Vor dem Mischungszeitpunkt um 07:42 UTC. Die Luftmassen unterhalb von 1000 m befinden sich in der stabilen bodennahen Schicht (SBS) unterhalb der Residualschicht (RS). Rechts: Nach dem Mischungszeitpunkt um 13:12 UTC.



**Abb. 7.6:** Vertikalprofile von O<sub>3</sub> um a) 07:27 UTC, b) 11:42 UTC, c) 13:12 UTC. Die Farben geben die spez. Feuchte, die Grenzschichthöhe (schwarze Linie) und Residualschichthöhe (graue Linie) an. Die Pfeile weisen die verschiedenen meteorologischen Prozesse auf und sind in den Textbausteinen erklärt.



**Abb. 7.7:** Wie Abb. 7.6 für CO<sub>2</sub>

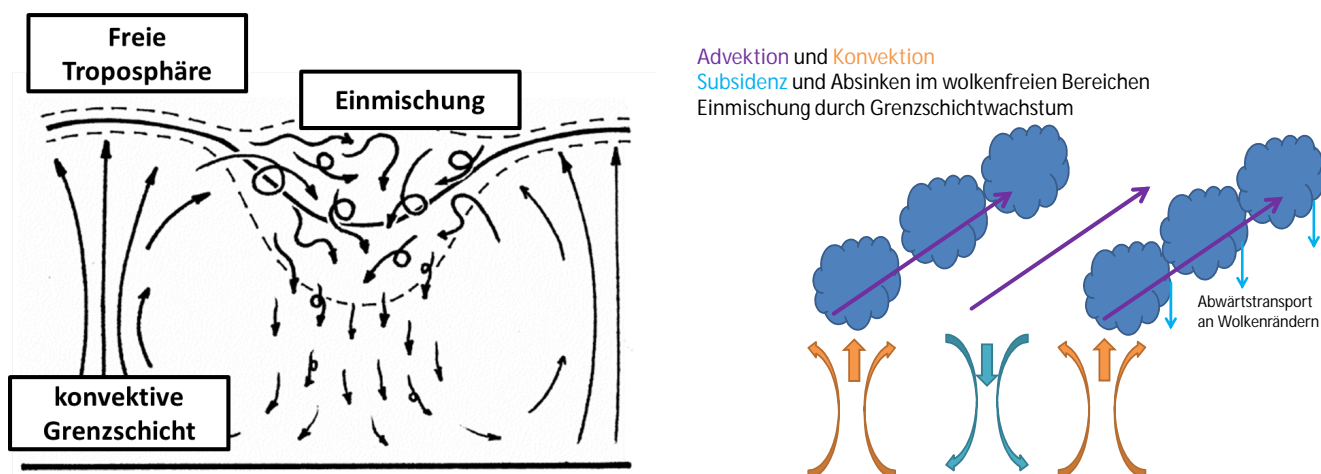


Abb. 7.8: Rechts: Konvektion und Einnischungsprozesse in einer konvektiven Grenzschicht (Hägeli et al., 2000). Links: Übertragung der Prozesse auf die Entstehung von Wolkenstraßen.

## 7.4 Identifizierung von Transportprozessen mit Spurengasprofilen

Die Vertikalprofile von  $O_3$  und  $CO_2$  zu verschiedenen Uhrzeiten (7:27, 11:42, 13:12 UTC) sind in den Abbildungen 7.6 und 7.7 dargestellt. Die Farben zeigen die spezifischen Feuchten: Blau steht für sehr niedrige Feuchte und Rot für sehr hohe Feuchte. Die Grenzschichthöhen (schwarz) oder Residualschichthöhen (grau) entstammen den Untersuchungen der Feuchte- und Temperaturprofile und wurden auch mit den abgeleiteten Grenzschichthöhen (vgl. Kapitel 4) aus den Radiosondenmessungen evaluiert.

Die Vertikalprofile der beiden Spurengase zeigen komplexe Vertikalstrukturen, während höchstens eine homogene Struktur in der Residualschicht am Morgen (07:27 UTC) und in der PGS am späten Nachmittag (13:12 UTC) zu beobachten ist. In Lehrbüchern werden häufig nur idealisierte homogene Vertikalprofile von meteorologischen Variablen (z. B. für  $\theta$  (Stull, 1988)) oder chemischen Spurenstoffen (z. B. für  $O_3$  (Beck et al., 1997)) in der PGS mit einem scharfen Gradienten an der Oberkante der PGS und ungestörtem Verlauf in der FT abgebildet (vgl. Abb. 1.4). Dies trifft in den Aufwindregionen innerhalb der PGS auch durchaus zu (Abb. 7.8).

Im Zusammenhang mit großflächiger Kumulusbewölkung oder einer geschlossenen Stratusschicht treten jedoch weitere subskalige Prozesse durch turbulenten Wärme- und Feuchtetransport auf, die die Vertikalstruktur der Spurengasprofile beeinflussen können (Lock et al., 2000; Stevens et al., 2003). Innerhalb der Abwindregionen zwischen den Wolken sind demnach deutlich komplexere Strukturen von Spurengasen zu beobachten (Hägeli et al., 2000). Basierend auf den theoretischen Ansätzen der genannten Autoren zeigt Abbildung 7.8 schematisch die möglichen meteorologischen Prozesse, die auch mit der vorherrschenden Wettersituation im Einklang stehen und somit den Mischungsprozess ermöglichen: (i) Windscherung und Advektion, (ii) Konvektion, (iii) Absinken an Wolkenrändern durch Strahlungskühlung, (iv) Absinken im wolkenfreien Bereich der konvektiven Wirbel.

Im Folgenden werden die dynamischen Prozesse (Advektion, Hebung und Einnischung) diskutiert, die auch schon in den Profilen (Abb. 7.6 und 7.7) eingezeichnet sind.

### Advektion

07:27 UTC Eine ozonreiche und trockene Luftmasse liegt zwischen 2100–2500 m.

11:42 UTC Die Residualschichthöhe ist nicht mehr zu beobachten und die Luftmassen oberhalb der PGSH sind sehr inhomogen verteilt. Zwischen 2200–2500 m ist weiterhin die ozonreiche Luftmasse mit geringer Feuchte zu beobachten. Oberhalb von 2500 m befindet sich nun eine feuchte Luftmassen mit niedrigem  $O_3$ -Mischungsverhältnis.



13:12 UTC Das O<sub>3</sub>-Maximum (>55 ppb) ist weiterhin zwischen 2000 und 2200 m zu beobachten. Darüber befindet sich immer noch die etwas feuchtere und ozonärmere Luftmasse.

Aus der Advektion der Luftmassen lässt sich schließen, dass die Luftmassen unterhalb von 2000 m durch weitere Prozesse innerhalb der PGS beeinflusst werden. Hingegen ist eine konstante Anströmung einer ozonreichen und trockenen Luftmassen in allen Profilen zu beobachten und darüber eine etwas feuchtere Luftmasse mit geringerem Ozon, die wahrscheinlich durch Hebung beeinflusst wurde:

### Hebung

11:42 UTC Oberhalb der PGS ab 1640 m sind zwei O<sub>3</sub>-Minima (~38 ppbv) mit erhöhten q<sub>v</sub>-Maxima (~4 gkg<sup>-1</sup>) zu erkennen. CO<sub>2</sub> ist am Morgen (07:27 UTC) in Bodennähe deutlich erhöht und stimmt mit den Mischungsverhältnisspitzen zwischen 1600–2300 m zu diesem Zeitpunkt überein. Die gleichen Zusammenhänge gelten auch für Ozon und können auch in den Vertikalprofilen von CO (nicht gezeigt) beobachtet werden. Dies deutet darauf hin, dass die O<sub>3</sub>-armen und CO<sub>2</sub>-reichen Luftmassen in 1600–2300 m (11:42 UTC) vom Boden (07:27 UTC) gehoben wurden.

Zu beachten ist, dass das Flugzeug im wolkenfreien Bereich zwischen den Wolkenstraßen aus der FT in die PGS geflogen ist. Dieser Bereich gilt häufig als absinkender Bereich zwischen den Konvektionswirbeln (Hägeli et al., 2000) und würde gegen eine lokale vertikale Hebung sprechen. Unabhängig davon weisen die lokalen bodennahen Luftmassen am Morgen auf ähnliche Mischungsverhältnisse zwischen 1600 und 2300 m am Nachmittag hin. Dies ist genau der Bereich, in dem die Mischungslinie beobachtet wurde und ein Indiz für die lokale Mischung.

### Einmischung

11:42 UTC Die PGSH erreicht eine Mächtigkeit von 1640 m mit einer Inversionsstärke von 3 K. Die vorherige Residualschicht erreicht eine Höhe von rund 2100. Demnach ist es sehr wahrscheinlich, dass ein Teil dieser vorherigen Residualschicht in die neu anwachsende PGS eingemischt worden ist.

13:12 UTC Die Vertikalprofile der Spurengase sind fast vollständig homogen in der PGS. Die PGSH ist auf 2000 m angewachsen und weist eine Inversionsstärke von 8 bis 10 K auf. Das Anwachsen der Grenzschicht seit 11:42 UTC ist ein Indiz für weitere Einmischung von darüber liegenden Luftmassen, aber die Zunahme der Inversionsstärke limitiert die weitere Einmischung und auch den Aufwärtstransport. Die Zunahme der Inversionstärke kann erklärt werden durch großskalige Subsidenz, die auch in den Spurengasprofilen oberhalb von 2500 m zu erkennen ist. Aus der Literatur ist außerdem bekannt, dass Strahlungskühlung am Oberrand der Wolken ein Absinken der Luftmassen fördert (u. a. Stevens, 2007; Malinowski et al., 2011) und somit die Inversionsstärke beeinflusst.

Nach Seibert et al. (1997) ist es nicht möglich, verschiedene meteorologische Prozesse und Wechselwirkungen mit dem Boden aus einem Vertikalprofil eines Spurengases zu identifizieren. Doch die Zusammenstellung von zeitlich verschiedenen Vertikalprofilen mehrerer Spurengase konnte gezeigt werden, dass meteorologische Prozesse durchaus erkennbar sind. Der wahrscheinliche Einfluss dieser Prozesse wurde in verschiedenen Studien im Verbindung mit dem theoretischen Entstehungsprozess von Wolkenstraßen gezeigt (Abb. 7.8) (Etling and Brown, 1993; Lemone, 1973). Dieser Entstehungsprozess folgt der Annahme, dass die Luftmassen unterhalb der Wolken aufsteigen, während sie in wolkenfreien Bereichen absinken und damit eine Sekundärzirkulation entstehen lassen. Bereits in den 1970er-Jahren wurden einfache lineare Theorien entwickelt, um die wesentlichen Aspekte des Phänomens Wolkenstraße zu erklären (u. a. Lilly, 1966; Etling, 1971; Wippermann et al., 1978; Chlond, 1992; Moeng and Sullivan, 1994). Die Autoren zeigen, dass die dynamische Scherinstabilität, die thermische Instabilität oder die Kombination beider Mechanismen Einfluss auf die Wirbelbildung hat. Diese Mechanismen wurden in weiteren zahlreichen Modellansätzen, Laborstudien (u. a. Lilly, 1968; Deardorff, 1980; Gryning and Batchvarova, 1994; Fedorovich and Mironov, 1995) und mit LES-Simulationen untersucht (Sullivan et al., 1998; Conzemius and Fedorovich, 2006). Verbesserungen in der Messtechnik halfen dabei, mikroskalige Prozesse mit hochfre-

quenten Temperatur- und Feuchtemessungen innerhalb von Schichtwolken zu untersuchen, aber auch, neuere kontinuierliche Messungen mit LIDAR-Verfahren zu erheben. Dennoch ist die Zahl der Veröffentlichungen zu Einmischvorgängen weiterhin sehr gering (Flamant and Pelon, 1997; Davis et al., 1997; Stevens et al., 2003; Träumner et al., 2011), und nur eine Arbeit ist bekannt, die den Einmischungsprozess mit Spurengaskorrelation untersucht (Neuman et al., 2012).

Durch die Kombination der Vertikalprofile der Spurengase und der Analyse der Korrelationen konnten jetzt erstmalig Indizien gesammelt werden, die die hinter der Mischung liegenden Prozesse aufdecken. Zeitlich höher aufgelöste Spurengasmessungen wie auch 3D-Windmessungen, die im Rahmen dieser Arbeit nicht vorlagen, könnten zu noch prägnanteren Ergebnissen führen.

#### 7.4.1 Ursprung der Luftmassen mit Transportmodellen

Wie besprochen, zeigen die Vertikalprofile am 06.09.2011 Indizien für verschiedene meteorologische Prozesse, die das Auftreten und die zeitliche Änderung der Mischungslinie erklären können. Allerdings könnte die Mischungslinie auch durch den Ferntransport von unterschiedlichen Luftmassen beeinflusst worden sein.

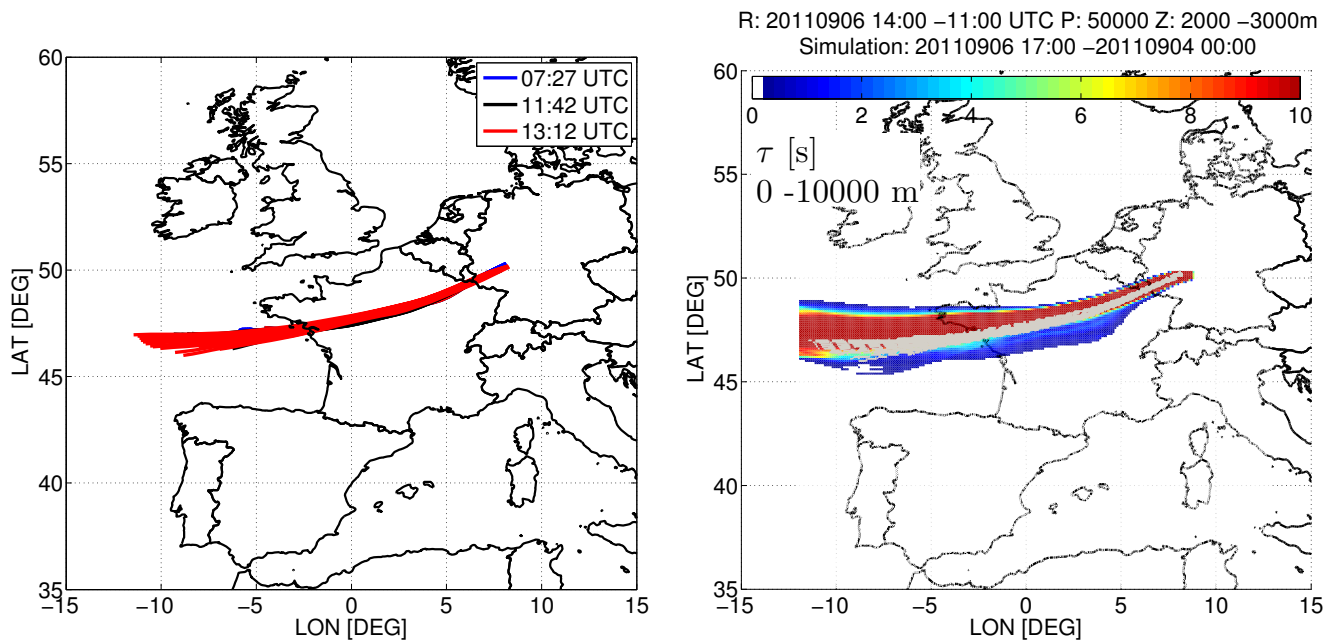
Um dies nachzuweisen, werden die beprobten Luftmassen zwischen 1600 und 2200 m zu den drei Zeiträumen der Vertikalprofile mit den Rückwärtstrajektorien basierend auf COSMO-7 berechnet. Abbildung 7.9 und Abbildung 7.10 zeigen, dass diese Luftmassen alle aus demselben Ort und Höhenbereich stammen. Es ist daher unwahrscheinlich, dass die Luftmassen zur Mischung führen. Die Variation der  $\theta$ -Niveaus, auf dem die Trajektorienbündel liegen, resultiert aus den unterschiedlichen Initialisierungsbedingungen. Auch der Transportweg der Luftmassen zwischen FLEXPART-COSMO-7, COSMO-EU (nicht gezeigt) und den Trajektorien zeigt keinen Unterschied im Ursprung, und die Luftmassen bleiben relativ kompakt aus derselben Region (Abb. 7.9).

Im Gegensatz zur letzten Fallstudie in Kapitel 6 ist dabei kein Unterschied zwischen FLEXPART-COSMO-7 und FLEXPART-COSMO-EU zu beobachten, und dies bestätigt, dass beide Modelle die meteorologische Situation gut wiedergeben. Des Weiteren spiegelt auch die konstante chemische Signatur der Luftmassen in der FT die Anströmung wider.

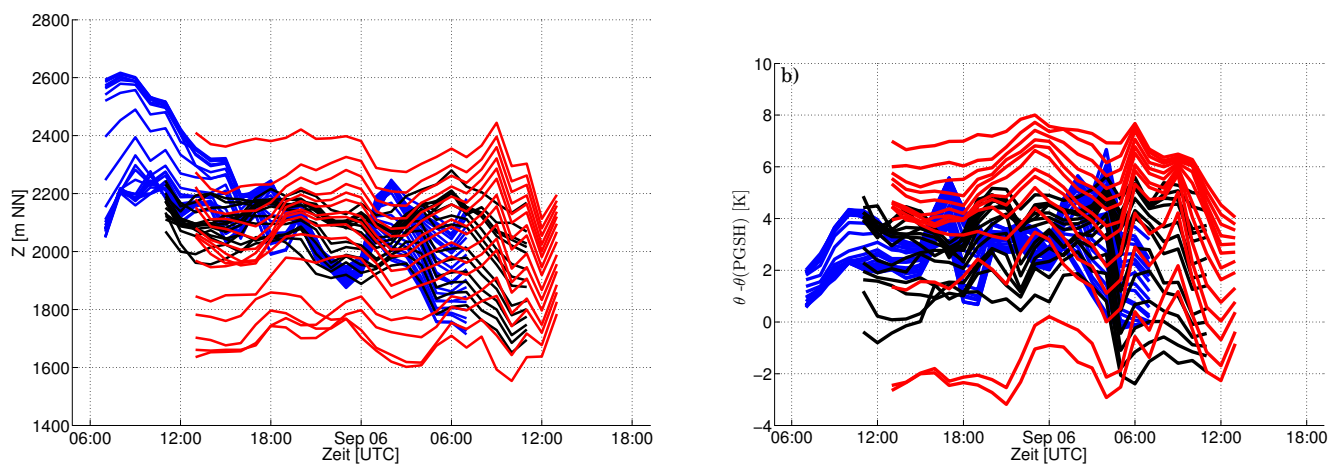
Die klare vertikale Separation der Luftmassen zwischen der FT und PGS lässt sich gut mit den Trajektorien (Abb. 7.11) und dem FLEXPART-Modell (Tab. 7.2) zeigen. Eine Erklärung, wie die Abbildungen erstellt wurden, ist in Kapitel 6 zu finden. Luftmassen oberhalb von 2000 m sind ozonreicher und ziehen schneller mit dem Windfeld, während die Luftmassen unterhalb von 2000 m ozonärmer sind und deutlich langsamer ziehen. Auch die FLEXPART-Simulationen bestätigen diese Beobachtung. Je nachdem, welche Höhe für die Freisetzung der passiven Partikel gewählt wurde, verbleiben die Partikel zu 90 % in den jeweiligen Schichten. Demnach ist keine Interaktion zwischen diesen beiden Luftschichten während des Transportweges zu erkennen.

Partikel freigesetzt Schichten	R: 1000 - 2000 m Relative Aufenthaltszeit	R: 2000 - 3000 m Relative Aufenthaltszeit
4000 - 10000	0 %	0 %
2000 - 4000	9 %	90 %
500 - 2000	71 %	9 %
0 - 500	20 %	1 %

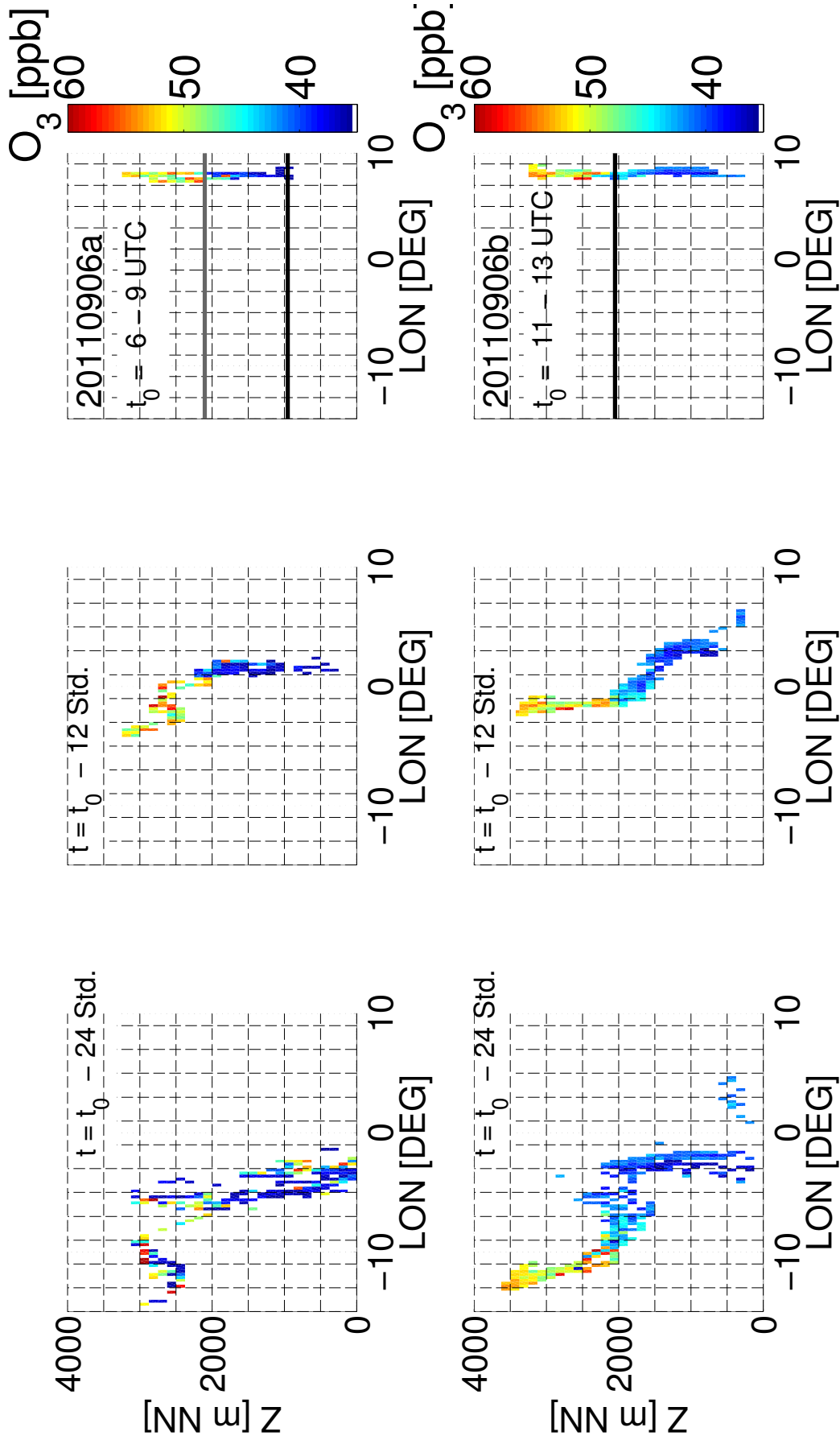
**Tab. 7.2:** Zeitlich integrierte Aufenthaltszeit über 24 Stunden nach dem freisetzen der Partikel (R) (1000 - 2000 m) und (2000 - 3000 m). Dargestellt ist die relative Aufenthaltszeit in jeder Schicht im Vergleich zur Gesamtaufenthaltszeit in allen Schichten.



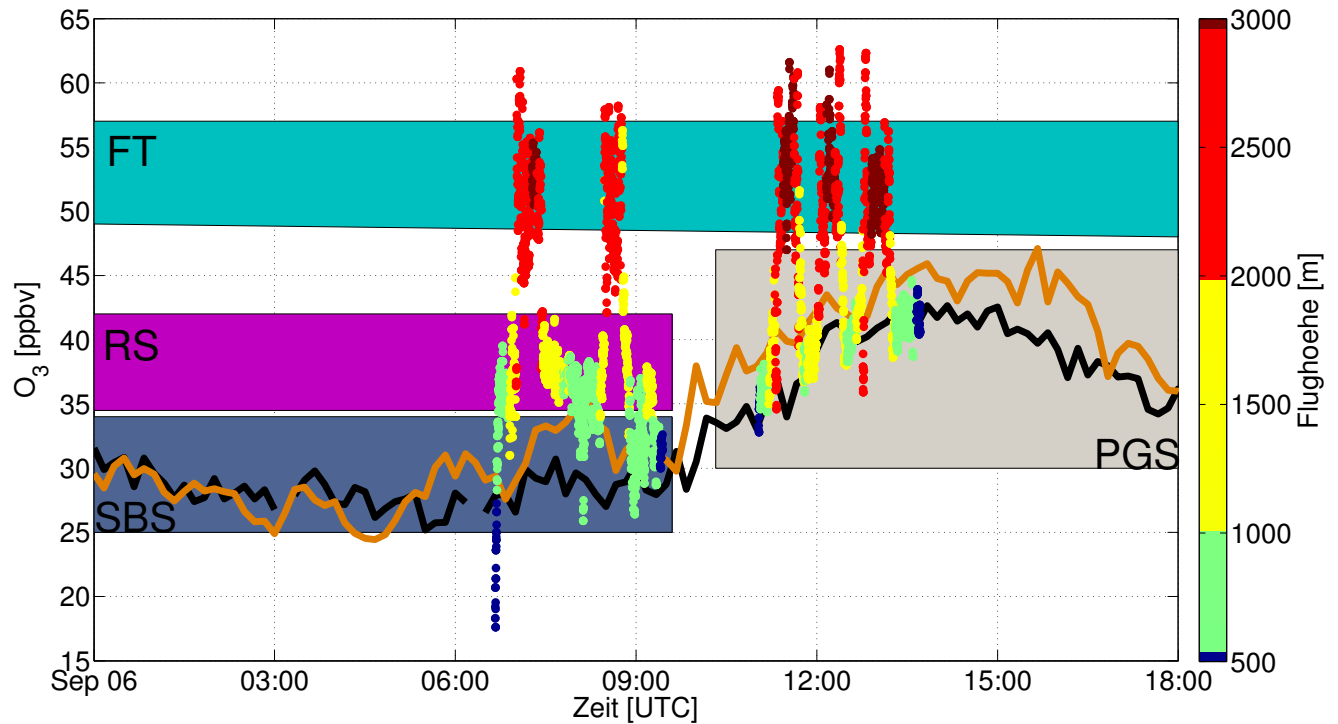
**Abb. 7.9:** a) Ursprung der Luftmassen zwischen 1640 - 2200 m (Mischungslinie) für die drei Vertikalprofile. b) Aufenthaltszeit der Luftmassen basierend auf FLEXPART-COSMO-7-Simulationen, überlagert mit den Trajektorien aus a) in grau.



**Abb. 7.10:** 2D-Schnitt der Trajektorien aus Abb. 7.9 zu den verschiedenen Zeiten in dem Bereich der Mischungslinie: a) Z - Zeit, b) normierte potentielle Temperatur auf die PGSH - Zeit.



**Abb. 7.11:** Zeitlicher Transport der ozonarmen und ozonreichen Luftmassen basierend auf den Rückwärtstrajektorien während Flug 20110906a und 20110906b. Die Ozonmessungen vom Flugzeug wurden dazu mit den Trajektorien überlagert und auf eine Karte in Lon-Z für 3 Zeitschritte gelegt. Datenpunkte innerhalb einer Box wurden gemittelt. Zu beachten ist, dass die Luftmassen zum Teil bereits 24 Stunden später das Modellgebiet verlassen haben (rechts oben).



**Abb. 7.12:** Ozonmessungen (UV-Absorption (schwarz) und DOAS (orange))<sup>2</sup> auf und um den Kleinen Feldberg mit dem Flugzeug am 06.09.2011. Zur Übersicht sind die verschiedenen Schichttypen der PGS eingezeichnet. Der sprunghafte Anstieg von O<sub>3</sub> am Boden während der Übergangsphase am Mittag (10 UTC), wird wahrscheinlich durch die Einmischung von ozonreichen Luftmassen aus der freien Troposphäre und der Residualschicht forciert.

## 7.4.2 Einfluss des Mischungsprozesses auf die bodennahen Spurengase

In früheren Studien wurde bereits gezeigt, dass verschmutzte Schichten oberhalb der PGS weit transportiert und gegebenenfalls in einem Reinluftgebiet durch Einmischen eingetragen werden und somit lokal für eine Überschreitung des lokalen Schwellenwerts sorgen können (McKendry and Lundgren, 2000; Neuman et al., 2012).

Der Einfluss auf die lokale Bodenmessung durch Einmischen von Luftmassen aus der FT ist in dieser Fallstudie mit den Trajektorien nicht klar nachzuvollziehen (Abb. 7.11). Dennoch weisen die Ozonmischungsverhältnisse der Boden- und Flugzeugmessungen darauf hin, dass durch Einmischen aus der FT der O<sub>3</sub>-Gehalt am Boden gestiegen ist (Abb. 7.12). Am Morgen sind nur geringe Ozonmischungsverhältnisse am Boden zu beobachten, sie werden im ersten Flug nur durch Messwerte unterhalb von 800 m bestätigt. Gegen Ende des ersten Fluges kommt es zu einer Vereinigung der Luftmassen unterhalb des Feldbergniveaus mit den darüber liegenden Luftmassen, gleichzeitig steigen die Bodenmesswerte nur langsam an. Zwischen beiden Flügen kommt es zu einem plötzlichen Anstieg von O<sub>3</sub> um 6 ppbv pro Stunde bis auf maximal 43 ppbv zum Mittag. Die rapiden Anstiege des Ozonmischungsverhältnisses könnten durch Abwärtsmischung aus der FT (McKendry and Lundgren, 2000) oder durch lokale photochemische Produktion entstanden sein. Somit könnte die Erhöhung des bodennahen Ozons durch das Einmischen der ozonreichen Luftmassen aus der FT auf die Bodenmessungen eingewirkt haben. Dieser Abwärtstransportprozess würde gut mit dem Zeitpunkt des Auftretens der Mischungslinie übereinstimmen. Allerdings werden keine kritischen Schwellenwerte überschritten, sodass der Einfluss auf die Bodenmessungen nur geringfügig ist. In der CO<sub>2</sub>-Bodenmessung ist keine lokale Erhöhung zu erkennen, wahrscheinlich überwiegt die großflächige Reduktion von CO<sub>2</sub> durch die Photosynthese gegenüber diesem lokalen Einmischungsprozess.

<sup>2</sup>Ozonmessungen während der Messkampagne PARADE: UV-Absorption (Max-Planck-Institut für Chemie) und Differenzielle optische Absorptionsspektroskopie (DOAS, Universität Heidelberg)

## 7.5 Zusammenfassung und Diskussion

Homogene Vertikalverteilungen von Spurengasen in der PGS können durch die Interaktionen verschiedener Transportprozesse gestört werden. Die verschiedenen Prozesse können dabei selten mit einem einzelnen Profil identifiziert werden.

Drei Vertikalprofile von verschiedenen Spurengasen und Partikelanzahlkonzentrationen konnten am 06.09.2011 in einem wolkenfreien Bereich gemessen werden. Der starke Westwind advehierte kühlere Luftmassen vom Atlantik und sorgte für die Entstehung von Wolkenstraßen. Turbulenz innerhalb der PGS bewirkte den Transport von Wärme, Feuchte, Impuls und auch die Durchmischung und Homogenisierung von Spurengasen und Aerosolen. Großskaliges Absinken innerhalb der flachen Hochdruckwetterlage und Einmischung durch das Anwachsen der PGS gehören ebenfalls zu den Prozessen, die die Vertikalverteilung mit beeinflussen können. Die theoretischen Prozesse aus den Arbeiten unter anderem von Lock et al. (2000); Stevens et al. (2003) konnten auf die Verteilung der Spurengase  $\text{CO}_2$  und  $\text{O}_3$  angewendet werden, um die Auswirkungen auf die Spurengasmischung zu bestimmen. Es konnte gezeigt werden, dass sowohl konvektiver Vertikaltransport der Luftmassen vom Boden in die FT als auch Advektion einer ozonreichen und trockenen Luftmasse in der FT vorlagen.

Der Mischungsprozess lässt sich mit den zeitlichen Änderungen der Korrelationen zwischen  $\text{CO}_2$  und  $\text{O}_3$  zeigen. Beide Spurengase sind zu allen Zeitpunkten positiv korreliert, während um 11:42 UTC eine Mischungslinie eine Antikorrelation von  $r = -0.84$  aufweist. Diese Mischungslinie entsteht wahrscheinlich durch die Hebung von  $\text{CO}_2$ -reichen und  $\text{O}_3$ -armen Luftmassen aus der morgendlichen stabilen Grenzschicht. Dieser Mischungsprozess und die Homogenisierung der Profile sind an der zeitlichen Veränderung der Korrelation, mit dem Verschwinden der Mischungslinie zu sehen. Sowohl die meteorologische Situation als auch die abgeleiteten atmosphärischen Prozesse lassen nur geringen Zweifel an den Beobachtungen zu. Außerdem konnte gezeigt werden, dass die Einmischung von Luftmassen aus der FT lokal die  $\text{O}_3$ -Bodenmischungsverhältnisse modifiziert haben könnte.

# Kapitel 8

## Zusammenfassung und Ausblick

### 8.1 Zusammenfassung

Auf der Basis umfangreicher boden- und luftgestützter Daten, die im Rahmen der Messkampagne PARADE im Sommer 2011 erfasst wurden, werden in dieser Arbeit einerseits die tageszeitliche Entwicklung der Grenzschicht über komplexem Gelände und andererseits die Transporteigenschaften von Spurengasen untersucht. Dazu zählen auch der Ferntransport und der lokale Austausch mit der freien Troposphäre. Zur Untersuchung dieser Prozesse wurden meteorologische Größen, Spurengase und Aerosole am Boden und Vertikalprofile mit einem Kleinflugzeug und Radiosonden auf und um den Kleinen Feldberg im Taunus gemessen. Die Variabilität der Luftmassenzusammensetzung über der Messregion lässt sich einerseits aus traditionellen Mittlungen der Vertikalprofile gewinnen und andererseits über die Verknüpfung der Messgrößen mit Rückwärtstrajektorien und Dispersionsmodellen, basierend auf Analysen von Wetterverhorsagemodellen (verschiedene COSMO-Versionen). Diese Methoden konnten genutzt werden, um folgende vier Fragen zu beantworten:

#### **1) Wie sieht die Grenzschicht aus Radiosondenmessungen während der Messkampagne PARADE aus?**

Für die Bestimmung der planetaren Grenzschichthöhe wurden verschiedene bekannte Methoden auf die meteorologischen Daten der Radiosondenmessungen angewendet. Als etablierte Methode wurde dabei die Bulk-Richardson-Zahl-Methode ( $RI_B$ ) als Referenzwert verwendet, da diese sowohl unter stabilen als auch unter labilen Bedingungen mit denselben Kriterien genutzt werden kann. Des Weiteren konnte mit dieser Methode immer eine Grenzschichthöhe bestimmt werden, unabhängig vom subjektiven Schwellenwert der Richardson-Zahl. Andere Methoden sind hingegen stärker an die atmosphärische Stabilität gebunden, weshalb mit diesen nicht immer eine Grenzschicht ermittelt werden konnte. Die Häufigkeits- und zeitlichen Verteilungen der ermittelten Grenzschichthöhen aus allen Methoden variieren stark. Es hat sich dabei gezeigt, dass alle Methoden zu verschiedenen Tageszeiten eine niedrige Übereinstimmung mit der  $RI_B$ -Methode haben, wenn eine Differenz zu dieser von 100 m zugelassen wird. Schließlich wurde eine repräsentative Grenzschichthöhe (GSH) nach Sichtprüfung mehrheitlich aus der  $RI_B$ -Methode (85%) gewählt.

Es kann angenommen werden, dass die Qualität der ermittelten Grenzschichthöhe sehr gut ist, wenn viele Methoden eine gleiche (ähnliche) Grenzschichthöhe bestimmen. Die Qualitätsstudie ergab, dass sowohl für stabile als auch für labile Bedingungen in 95% der Fälle die Grenzschichthöhen mit mindestens drei Methoden mit einer Differenz von 125 m übereinstimmen. Die Grenzschichthöhe zeigt häufig einen Tagesgang mit hohen Grenzschichten, wenn die Messregion unter Tiefdruckeinfluss steht und niedrige Grenzschichten ohne klaren Tagesgang unter Hochdruckeinfluss. Während die lokalen Bedingungen keinen klaren Zusammenhang zwischen den Größen (Temperatur, Wind) und der Grenzschichthöhe aufzeigten, ist es sehr wahrscheinlich, dass eher die großskalige Subsidenz in der Hochdruckwetterlage für das Absinken der Grenzschichthöhe verantwortlich ist.

Der Einfluss der Grenzschicht- und Atmosphärendynamik auf dem KF lässt sich aus den CO<sub>2</sub>-Messungen am Boden nicht ableiten. Perioden unter Tiefdruckeinfluss sind geprägt von Westwind und hohen Grenzschichten verbunden mit ausgeprägten Tagesgängen im CO<sub>2</sub> und niedrigen Mischungsverhältnissen. Hingegen sind Perioden unter Hochdruckeinfluss mit sehr niedrigen Grenzschichten verbunden, Advektion von Luftmassen aus Südeuropa, hohen CO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnissen und hoher Variabilität.

## **2) Wie gut repräsentieren numerische Wettervorhersagemodelle die Entwicklung der Grenzschichthöhe über der Messregion?**

Trotz der komplexen Geländeform der Messregion, werden sowohl die meteorologischen Variablen (Temperatur, Feuchte, Wind) als auch die damit verbundene ermittelte Grenzschichthöhe sehr gut von operationellen Wettervorhersagemodellen (COSMO-EU, COSMO-7, COSMO-DE) wiedergegeben; es ist zu vermuten, dass dies daran liegt, dass die Grenzschichthöhe in dieser Untersuchung weniger von den lokalen Bedingungen als vielmehr von der Großwetterlage beeinflusst wurde. Die normierte systematische Abweichung der modellierten konvektiven Grenzschichthöhe gegenüber den Beobachtungen ist relativ gering und liegt zwischen -6 % (COSMO-7), +2 % (COSMO-EU) und +12 % (COSMO-DE), während in der Nacht -18 bis +22, % für die Modelle bestimmt wurden. Diese gute Übereinstimmung wurde bisher in keiner bekannten Studie gezeigt. Interessanterweise zeigt das Modell mit der höchsten horizontalen Auflösung (COSMO-DE) die schwächste Übereinstimmung. Unwahrscheinlich ist es, dass die unterschiedliche Anzahl an Vertikalschichten zwischen den Modellen dafür verantwortlich ist, da COSMO-7 und COSMO-EU trotz der vertikalen Unterschiede (60 zu 40 Schichten) ähnliche Ergebnisse liefern. Außerdem zeigten alle Analysen der Modelle Schwächen bei der 10m-Windgeschwindigkeit, wenn der Wind aus Ost bis Süd wehte. Hier wurde häufig eine zu geringe Windgeschwindigkeit simuliert. Kanalisierungseffekte und weitere durch die Orographie bedingte Effekte, werden wahrscheinlich nicht ausreichend wiedergegeben.

## **3) Welchen Effekt haben Ferntransporte auf die vertikale Spurengasverteilung am Messort?**

An einem Messtag (02.09.2011) konnte eine Luftmasse in der freien Troposphäre identifiziert werden, die charakteristische Merkmale einer Grenzschicht aufzeigte. Es konnte gezeigt werden, dass diese Luftmasse nicht aus der lokalen Grenzschicht stammte, sondern durch Ferntransport zur Messregion gelangt war. Sowohl rein kinematische Trajektorien als auch FLEXPART-COSMO zeigten mit denselben meteorologischen antreibenden Daten (COSMO-7), dass diese Luftmassen durch eine Warmfront aus dem Rhein-Tal über Ost- und Südfrankreich gehoben worden sein mussten.

Vergleichende FLEXPART-Simulationen mit zwei COSMO-Varianten vergleichbarer Auflösung zeigen allerdings systematische Unterschiede der Luftmassenherkunft und insbesondere der Emissionssensitivität, sodass diese womöglich nicht aus dieser Region stammt, sondern aus Spanien oder einer weiteren unbekannt Region. Vergleiche zwischen beiden meteorologischen Datensätzen ergaben, dass mit COSMO-7 häufig eine zu hohe Grenzschichthöhe in Mitteleuropa gegenüber COSMO-EU bestimmt wurde.

Eine mögliche Ursache für die Grenzschichthöhendifferenz zwischen den COSMO-Versionen könnte in der unterschiedlichen initialisierten Bodenfeuchte bestehen. Es konnte eine eindeutige Antikorrelation zwischen der spezifischen Feuchtedifferenz und der Grenzschichthöhendifferenz gefunden werden. Interessanterweise werden gerade in diesem Zusammenhang zwei verschiedene Ansätze in den beiden COSMO-Versionen verfolgt. In COSMO-EU wird eine eher unphysikalische SMA-Methode verwendet zur Verbesserung der Vorhersage der 2m-Temperatur nach 12 UTC. Diese Methode sorgt für eine kontinuierliche Feuchte im Boden und somit auch für eine Veränderung der turbulenten Wärmeflüsse mit dem Effekt, dass die Grenzschichthöhe niedriger ist. In COSMO-7 wird diese Methode nicht verwendet, was eine mögliche Erklärung für die Differenz in der Grenzschichthöhe ist.

In Dispersionsmodellen ist die Grenzschichthöhe eine wichtige Variable. Eine zu hohe Grenzschicht führt zu systematischen Unterschieden in der Luftmassenherkunft und insbesondere der Emissionssensitivität. Für die vorgestellte Fallstudie ergibt sich damit ein unvollständiges Ergebnis, da die Luftmassenherkunft wegen der unterschiedlichen Grenzschichthöhe in den Wettervorhersagemodellen nicht eindeutig geklärt werden konnte.



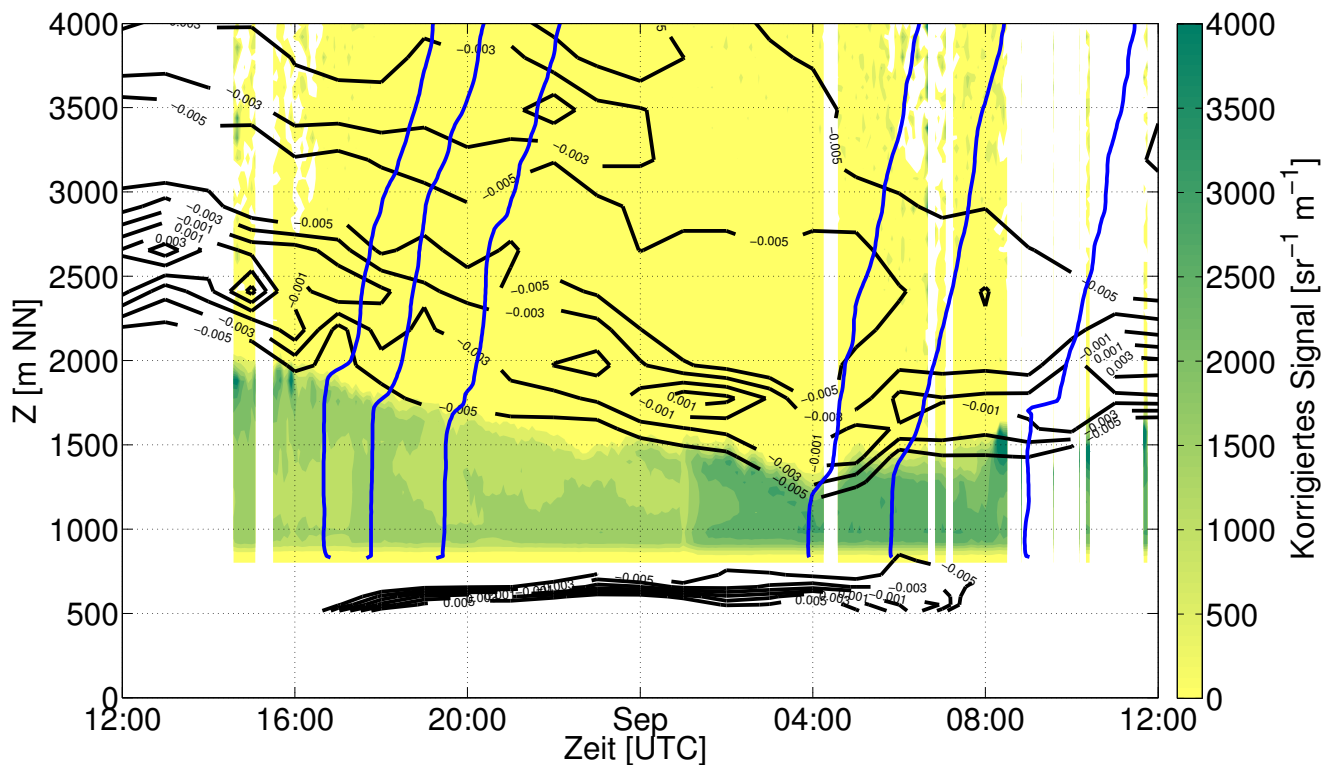
#### 4) Kann lokale Einmischung zwischen der Grenzschicht und der freien Troposphäre mit Spurengasen am Messort bestimmt werden?

Verschiedene Transportprozesse innerhalb der Grenzschicht sind für den Austausch mit darüber liegenden Luftmassen verantwortlich. Dazu gehören Advektion, Konvektion und Einmischung durch das Grenzschichtwachstum. Diese bekannten Prozesse konnten in den Vertikalprofilen der Spurengase  $\text{CO}_2$  und  $\text{O}_3$  identifiziert werden, welche zwischen Wolkenstraßen vermessen wurden. Darüber hinaus konnte mit der Korrelationen der Spurengase ( $\text{CO}_2$  und  $\text{O}_3$ ) zu den verschiedenen Zeitpunkten eine Mischungslinie detektiert werden, die aus den oben genannten atmosphärischen Prozessen resultiert.

Trajektorienrechnungen zeigen eine deutliche Separation der Luftmassen zwischen der Grenzschicht und freien Troposphäre. Dies deutet darauf hin, dass Mischung nicht durch Ferntransport entstanden ist. Die lokalen meteorologischen Bedingungen und die Entwicklung der atmosphärischen Stabilität am Messort in der Messregion lassen darauf schließen, dass lokale Einmischung zur Mischung geführt hat. Diese kann mit der Korrelationsmethode identifiziert werden.

## 8.2 Ausblick

Das Fallbeispiel in Kapitel 6 zeigte, dass unterschiedlich simulierte Grenzschichthöhen zu systematischen Unterschieden der Luftmassenherkunft und insbesondere der Emissionssensitivität führen kann. Um den Einfluss der Bodenfeuchte auf die Grenzschichthöhe weiter zu untersuchen, wären neue Simulationen der COSMO-7-Version, mit der Implementierung der SMA-Methode wie im COSMO-EU-Modell, für diesen Zeitraum notwendig. Aufgrund der Vielzahl orographisch induzierter Prozesse, die gerade in komplexen Mittelgebirgsregionen auftreten, ist es häufig nicht möglich, genau den Ort, Zeitpunkt und die Ausprägung der Mischung von Spurengasen zu bestimmen. Hier hat sich die vorgestellte Messstrategie



**Abb. 8.1:** Übereinstimmung der Residualschichthöhe über den zeitlicher Verlauf des korrigierten Aerosolrückstreusignals (gemittelt über 60 m in der Höhe und 5 Minuten in der Zeit), des Temperaturgradiententen berechnet aus den meteorologischen Daten von COSMO-DE (schwarz) und  $\theta_v$ -Profile berechnet aus den Radiosondenmessungen (blau).

gie zur Untersuchung von Mischungsprozessen zwischen der Grenzschicht und der freien Troposphäre bewährt. Ein Problem dieser Arbeit ist aber der äußerst limitierte Datensatz aus den Flugzeugmessungen sowohl hinsichtlich der Zeitauflösung als auch der Qualität der Daten. Bei zukünftigen Kampagnen wird angestrebt die Messungen von  $O_3$  und  $CO$  zu verbessern, unter anderem mit einer einheitlichen Zeitauflösung. Des Weiteren können mit 3D-Windmessungen turbulente Flüsse berechnet werden und zur Verifizierung der Mischung durch die Turbulenz verwendet werden. Spurengasmessungen von Stickoxiden können gezielt genutzt werden zur Identifizierung lokaler anthropogener Emissionen und um den Einfluss der Stickoxide auf das Ozonbudget besser abschätzen zu können.

Neben der planetaren Grenzschichthöhe ist zur Untersuchung von Transport- und Austauschprozessen die Höhe der Residualschicht eine weitere wichtige Größe. Blay-Carreras et al. (2014) zeigte, dass das Einmischen von Spurengasen erheblich zur Verdünnung/Erhöhung des morgendlichen Spurengasmischungsverhältnisses beitragen kann. Zur Bestimmung der Residualschichthöhe sind allerdings weitere Methoden notwendig. Dazu bietet sich an eine Kombination aus Ceilometer, Sondendaten und Modelldaten als Möglichkeit an.

Abbildung 8.1 zeigt den zeitlichen Verlauf des Aerosolrückstreusignals für den Zeitraum vom 31.08.2011 12 UTC für 24 Stunden. Das Rückstreusignal wurde in der Vertikalen über 60 m und in einem Zeitraum von 5 Minuten gemittelt. Profile, die durch Wolken (bis 5000 m) beeinflusst sind, wurden entfernt. Anhand der  $\theta_v$ -Profile ist deutlich zu erkennen, dass die Aerosolschichthöhe mit der Unterkante einer Temperaturinversion übereinstimmt. Dieser Temperaturinversion ist auch in den Analysen von COSMO-DE gut simuliert. Demnach kann an diesem Beispiel gezeigt werden, dass die Aerosolschichthöhe in der Nacht mit den lokal vorhergesagten Temperaturinversionen des COSMO-DE-Modells übereinstimmt. Ein flächendeckender Vergleich wäre mithilfe des Ceilometernetzwerks des Deutschen Wetterdienstes bereits jetzt schon möglich.

# Literaturverzeichnis

- Adamson, D. S., Belcher, S. E., Hoskins, B. J., and Plant, R. S. Boundary-layer friction in midlatitude cyclones. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 132(614):101–124, January 2006. doi: 10.1256/qj.04.145.
- Akimoto, H. Global air quality and pollution. *Science (New York, N.Y.)*, 302(5651):1716–9, December 2003. doi: 10.1126/science.1092666.
- André, J. C. and Mahrt, L. The Nocturnal Surface Inversion and Influence of Clear-Air Radiative Cooling. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 39(4):864–878, April 1982. doi: 10.1175/1520-0469(1982)039<0864:TNSIAI>2.0.CO;2.
- Angevine, W. M., Brioude, J., McKeen, S., and Holloway, J. S. Uncertainty in Lagrangian pollutant transport simulations due to meteorological uncertainty at mesoscale. *Geoscientific Model Development Discussions*, 7(4):4603–4643, July 2014. doi: 10.5194/gmdd-7-4603-2014.
- Arya, S. P. *Introduction to Micrometeorology*. Academic Press, 2nd edition, 2001.
- Baars, H., Ansmann, A., Engelmann, R., and Althausen, D. Continuous monitoring of the boundary-layer top with lidar. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(3):7281 – 7296, June 2008. doi: 10.5194/acp-8-7281-2008,2008.
- Baklanov, A., Joffre, S. M., Piringer, M., Deserti, M., Middleton, D. R., Tombrou, M., Karppinen, A., Emeis, S., Prior, V., Rotach, M., and Kuchin, A. Towards estimating the mixing height in urban areas Recent experimental and modelling results - COST 715 Action. Technical report, 2006.
- Baldauf, M., Ceci, G., Foerstner, J., Fuhrer, O., Gassmann, A., Herzog, H.-J., de Morsier, G., Reinhardt, T., Rivin, G., Torrisi, L., Vitagliano, P. L., and Zaengl, G. Further Developments of the Runge-Kutta Time Integration Scheme (RK): Final Report. Technical report, 2009a.
- Baldauf, M., Stephan, K., Klink, S., Schraff, C., Seifert, A., Foerstner, J., Reinhardt, T., Lenz, C., and Denhard, M. dphase\_lmk: LMK (COSMO-DE) high resolution model forecasts run by DWD for the MAP D-PHASE project. Technical report, World Data Center for Climate, 2009b.
- Baldauf, M., Förstner, J., Klink, S., Reinhardt, T., Schraff, C., Seifert, A., and Stephan, K. Kurze Beschreibung des Lokal-Modells Kurzzeitfrist COSMO-DE (LMK) und seiner Datenbanken auf dem Datenserver des DWD. Technical report, Deutscher Wetterdienst, 2011.
- Baumann-Stanzer, K. and Groehn, I. Alpine radiosoundings – feasible for mixing height Determination? *Meteorologische Zeitschrift*, 13(2):131 – 142, April 2004. doi: 10.1127/0941-2948/2004/0013-0131.
- Baxter, R. Determination of Mixing Heights from Data Collected during the 1985 SCCAMP Field Program. *Journal of Applied Meteorology*, 30:598 – 606, 1991. doi: 10.1175/1520-0450(1991)030<0598:DOMHFD>2.0.CO;2.
- Beare, R. J. Boundary layer mechanisms in extratropical cyclones. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 515:503–515, 2007. doi: 10.1002/qj.

- Beck, J. P., Asimakopoulos, N., Bazhanov, V., Bock, H. J., Chronopoulos, G., Muer, D. D., Ebel, A., Flatøy, F., Hass, H., van Haver, P., Hov, O., Jakobs, H. J., Kirchner, E. J. J., Kunz, H., Memmesheimer, M., van Pul, W. A. J., Speth, P., Trickl, T., and Varotsos, C. *Exchange of Ozone Between the Atmospheric Boundary Layer and the Free Troposphere*. Springer-Verlag, 1997. doi: 10.1007/978-3-642-58729-0\_5.
- Betts, A. K. FIFE Atmospheric Boundary Layer Budget Methods. *Journal of Geophysical Research*, 97 (D17):18523 – 18531, 1992. doi: 10.1029/91JD03172.
- Beyrich, F. and Leps, J.-P. An operational mixing height data set from routine radiosoundings at Lindenberg: Methodology. *Meteorologische Zeitschrift*, 21(4):337–348, August 2012. doi: 10.1127/0941-2948/2012/0333.
- Bissolli, P. and Dittmann, E. The objective weather type classification of the German Weather Service and its possibilities of application to environmental and meteorological investigations. *Meteorologische Zeitschrift*, 10(4):253–260, July 2001. doi: 10.1127/0941-2948/2001/0010-0253.
- Blay-Carreras, E., Pino, D., Vilà-Guerau de Arellano, J., van de Boer, a., De Coster, O., Darbieu, C., Hartogensis, O., Lohou, F., Lothon, M., and Pietersen, H. Role of the residual layer and large-scale subsidence on the development and evolution of the convective boundary layer. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(9):4515–4530, May 2014. doi: 10.5194/acp-14-4515-2014.
- Bolton, D. The Computation of Equivalent Potential Temperature. *Monthly Weather Review*, 108(7): 1046 – 1053, 1980. doi: 10.1175/1520-0493(1980)108<1046:TCEPT>2.0.CO;2.
- Bradley, R. S. and Keimig, F. T. Recent Changes in the North American Arctic Boundary Layer in Winter. *Journal of Geophysical Research*, 98(D5):8851–8858, 1993. doi: 10.1029/93JD00311.
- Brioude, J., Arnold, D., Stohl, a., Cassiani, M., Morton, D., Seibert, P., Angevine, W., Evan, S., Dingwell, a., Fast, J. D., Easter, R. C., Pisso, I., Burkhardt, J., and Wotawa, G. The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART-WRF version 3.1. *Geoscientific Model Development*, 6(6):1889–1904, November 2013. doi: 10.5194/gmd-6-1889-2013.
- Brock, C. A., Hudson, P. K., Lovejoy, E. R., Sullivan, A., Nowak, J. B., Huey, L. G., Cooper, O. R., Cziczo, D. J., de Gouw, J., Fehsenfeld, F. C., Holloway, J. S., Hübler, G., Lafleur, B. G., Murphy, D. M., Neuman, J. A., Nicks, D. K. J., Orsini, D. A., Parrish, D. D., Ryerson, T. B., Tanner, D. J., Warneke, C., Weber, R. J., and Wilson, J. C. Particle characteristics following cloud-modified transport from Asia to North America. *Journal of Geophysical Research*, 109(D23):D23S26, 2004. doi: 10.1029/2003JD004198.
- Brunner, D. The FLEXPART - COSMO model version 8.0. Technical Report March, EMPA, Dübendorf, 2011.
- Chapman, L. Transport and climate change: a review. *Journal of Transport Geography*, 15(5):354–367, September 2007. doi: 10.1016/j.jtrangeo.2006.11.008.
- Chen, F., Manning, K. W., LeMone, M. a., Trier, S. B., Alfieri, J. G., Roberts, R., Tewari, M., Niyogi, D., Horst, T. W., Oncley, S. P., Basara, J. B., and Blanken, P. D. Description and Evaluation of the Characteristics of the NCAR High-Resolution Land Data Assimilation System. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46(6):694–713, June 2007. doi: 10.1175/JAM2463.1.
- Chlond, A. Three-dimensional simulation of cloud street development during a cold air outbreak. *Boundary-Layer Meteorology*, 58(1-2):161–200, January 1992. doi: 10.1007/BF00120757.
- Chon, S. A. and Angevine, W. M. Boundary Layer Height and Entrainment Zone Thickness Measured by Lidars and Wind-Profiling Radars. *Journal of Applied Meteorology*, 39(8):1233–1247, 2000. doi: 10.1175/1520-0450(2000)039<1233:BLHAEZ>2.0.CO;2.

- Cody, R. P., Weisel, C. P., Birnbaum, G., and Liroy, P. J. The effect of ozone associated with summertime photochemical smog on the frequency of asthma visits to hospital emergency departments. *Environmental Research*, 58(1-2):184–194, June 1992. doi: 10.1016/S0013-9351(05)80214-2.
- Comrie, A. C. The climatology of surface ozone in rural areas: a conceptual model. *Progress in Physical Geography*, 14(3):295–316, September 1990. doi: 10.1177/030913339001400301.
- Conzemius, R. J. and Fedorovich, E. Dynamics of Sheared Convective Boundary Layer Entrainment. Part I: Methodological Background and Large-Eddy Simulations. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 63(4):1151–1178, April 2006. doi: 10.1175/JAS3691.1.
- Cooper, O. R., Moody, J. L., Parrish, D. D., Trainer, M., Holloway, J. S., Hübler, G., Fehsenfeld, F. C., Hu, G., and Stohl, A. Trace gas composition of midlatitude cyclones over the western North Atlantic Ocean : A seasonal comparison of O<sub>3</sub> and CO. *Atmospheric Environment*, 107(D7), 2002.
- Corsmeier, U., Behrendt, R., Drobinski, P., and Kottmeier, C. The mistral and its effect on air pollution transport and vertical mixing. *Atmospheric Research*, 74(1-4):275–302, March 2005. doi: 10.1016/j.atmosres.2004.04.010.
- Coulter, R. L. A case study of turbulence in the stable nocturnal boundary layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 52(1-2):75–91, 1990. doi: 10.1007/BF00123179.
- Cros, B., Durand, P., Cachier, H., Drobinski, P., Frejafon, E., Kottmeier, C., Perros, P., Peuch, V.-H., Ponche, J.-L., Robin, D., Said, F., Toupance, G., and Wortham, H. The ESCOMPTE program: an overview. *Atmospheric Research*, 69(3-4):241–279, 2004. doi: 10.1016/j.atmosres.2003.05.001.
- Crowley, J. N., Schuster, G., Pouvesle, N., Parchatka, U., Fischer, H., Bonn, B., Bingemer, H., and Lelieveld, J. Nocturnal nitrogen oxides at a rural mountain-site in south-western Germany. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(6):2795–2812, March 2010. doi: 10.5194/acp-10-2795-2010.
- Crum, T. D., Stull, R. B., and Eloranta, E. W. Coincident Lidar and Aircraft Observations of Entrainment into Thermals and Mixed Layers. *Journal of Climate and Applied Meteorology*, 26(7):774 – 788, 1987. doi: 10.1175/1520-0450(1987)026<0774:CLAAOO>2.0.CO;2.
- Dacre, H. F., Gray, S. L., and Belcher, S. E. A case study of boundary layer ventilation by convection and coastal processes. *Journal of Geophysical Research*, 112(D17):D17106, September 2007. doi: 10.1029/2006JD007984.
- Dacre, H. Evaluating the ability of a numerical weather prediction model to forecast tracer concentrations during ETEX 2. *Atmospheric Environment*, 44(3):294–303, January 2010. doi: 10.1016/j.atmosenv.2009.10.039.
- Davis, D. L., Bell, M. L., and Fletcher, T. A look back at the London smog of 1952 and the half century since. *Environmental health perspectives*, 110(12):A734–5, December 2002.
- Davis, K. J., Lenschow, D. H., Oncley, S. P., Kiemle, C., Ehret, G., Giez, A., and Mann, J. Role of entrainment in surface-atmosphere interactions over the boreal forest. *Journal of Geophysical Research*, 102(D24):29219, December 1997. doi: 10.1029/97JD02236.
- De Wekker, S. F. J. *Structure and morphology of the convective boundary layer in mountainous terrain*. Dissertation, 2002.
- De Wekker, S. F. J., Steyn, D. G., and Nyeki, S. A comparison of aerosol-layer and convective boundary-layer structure over a mountain range during staaarte '97. *Boundary-Layer Meteorology*, 113:249–271, 2004. doi: 10.1023/B:BOUN.0000039371.41823.37.
- Deardorff, J. W. Stratocumulus-capped mixed layers derived from a three-dimensional model. *Boundary-Layer Meteorology*, 18(4):495–527, June 1980. doi: 10.1007/BF00119502.

- Defant, F. Zur Theorie der Hangwinde, nebst Bemerkungen zur Theorie der Berg- und Talwinde. *Arch. Met. Geophys. Biocl.*, A1:421–450, 1949.
- Desiato, F., Finardi, S., Brusasca, G., and Morselli, M. TRANSALP 1989 experimental campaign-I. Simulation of 3D flow with diagnostic wind field models. *Atmospheric Environment*, 32(7):1141–1156, 1998. doi: 10.1016/S1352-2310(97)00196-9.
- DeWekker, S. F., Ameen, A., Song, G., Stephens, B. B., Hallar, A. G., and McCubbin, I. B. A preliminary investigation of boundary layer effects on daytime atmospheric CO<sub>2</sub> concentrations at a mountaintop location in the Rocky Mountains. *Acta Geophysica*, 57(4):904–922, 2009. doi: 10.2478/s11600-009-0033-6.
- Doms, D. A description of the nonhydrostatic regional COSMO-model, Part I: Dynamics and numerics. Technical report, Deutscher Wetterdienst, 2011.
- Doms, D., Förstner, J., Heise, E., Herzog, H., Mironov, D., Raschendorfer, M., Reinhardt, T., Ritter, B., Schrodin, R., Schulz, J., and Vogel, G. A description of the nonhydrostatic regional COSMO-model, Part II: Physical parameterization. Technical report, Deutscher Wetterdienst, 2011.
- Donnell, E. A., Fish, D. J., Dicks, E. M., and Thorpe, A. J. Mechanisms for pollutant transport between the boundary layer and the free troposphere. *Journal of Geophysical Research*, 106(D8):7847, April 2001. doi: 10.1029/2000JD900730.
- Drewnick, F., Böttger, T., von der Weiden-Reinmüller, S.-L., Zorn, S. R., Klimach, T., Schneider, J., and Borrmann, S. Design of a mobile aerosol research laboratory and data processing tools for effective stationary and mobile field measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(6):1443–1457, June 2012. doi: 10.5194/amt-5-1443-2012.
- Driedonks, A. and Tennekes, H. Entrainment effects in the well-mixed atmospheric boundary layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 30(1-4):75–105, 1984. doi: 10.1007/978-94-009-6514-0\_4.
- Elsom, D. M. *Atmospheric Pollution: A Global Problem*. Blackwell Publishers, 2 edition, 1992.
- Esler, J. G. Transport and mixing between airmasses in cold frontal regions during Dynamics and Chemistry of Frontal Zones (DCFZ). *Journal of Geophysical Research*, 108(D4):4142, 2003. doi: 10.1029/2001JD001494.
- Etling, D. Einfluß der thermischen Schichtung auf die Stabilität einer Ekmanschen Grenzschichtströmung. *Beitr. Phys. Atmosph.*, 44:169 – 186, 1971.
- Etling, D. and Brown, R. A. Roll vortices in the planetary boundary layer: A review. *Boundary-Layer Meteorology*, 65(3):215–248, August 1993. doi: 10.1007/BF00705527.
- Etling, D. *Theoretische Meteorologie: Eine Einführung*. 2008. doi: 10.1007/978-3-540-75979-9.
- Fast, J. D. and Zhong, S. Meteorological factors associated with inhomogeneous ozone concentrations within the Mexico City basin. *Journal of Geophysical Research*, 103(D15):18927 – 18946, 1998. doi: DOI:10.1029/98JD01725.
- Fay, B. Evaluation and Intercomparison of Mixing Heights Based on the New Prognostic Turbulence Scheme of the Pre-operational Limited Area Model at the German Weather Service. In *Harmo5 Conf.*, Rhodes, 1998.
- Fedorovich, E. and Mironov, D. V. A Model for a Shear-Free Convective Boundary Layer with Parameterized Capping Inversion Structure. *Journal of Atmospheric Sciences*, 52(1):83 – 95, 1995. doi: 10.1175/1520-0469(1995)052<0083:AMFASF>2.0.CO;2.
- Flamant, C. and Pelon, J. Lidar determination of the entrainment zone thickness at the top of the unstable marine atmospheric boundary layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 83:247–284, 1997. doi: 10.1023/A:1000258318944.

- Fochesatto, G. J., Drobinski, P., Flamant, C., Guedalia, D., Sarrat, C., Flatau, P. H., and Pelon, J. Evidence of dynamical coupling between the residual layer and the developing convective boundary layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 99:451–464, 2001. doi: 10.1023/A:1018935129006.
- Foken, T. *Angewandte Meteorologie: Mikrometeorologische Methoden*. Springer-Verlag, 2006.
- Freitas, S. R., Dias, M. a. F. S., Dias, P. L. S., Longo, K. M., Artaxo, P., Andreae, M. O., and Fischer, H. A convective kinematic trajectory technique for low-resolution atmospheric models. *Journal of Geophysical Research*, 105(D19):24375, October 2000. doi: 10.1029/2000JD900217.
- Galperin, B., Sukoriansky, S., and Anderson, P. S. On the critical Richardson number in stably stratified turbulence. *Atmospheric Science Letters*, 8(3):65–69, July 2007. doi: 10.1002/asl.153.
- Garratt, J. *The Atmospheric Boundary Layer*. University Press, Cambridge, 1992.
- Geels, C., Doney, S. C., Dargaville, R., Brandt, J., and Christensen, J. H. Investigating the sources of synoptic variability in atmospheric CO<sub>2</sub> measurements over the Northern Hemisphere continents: A regional model study. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 56:35–50, 2004. doi: 10.1111/j.1600-0889.2004.00084.x.
- Geels, C., Gloor, M., Ciais, P., Bousquet, P., Peylin, P., Vermeulen, a. T., Dargaville, R., Aalto, T., Brandt, J., Christensen, J. H., Frohn, L. M., Haszpra, L., Karstens, U., Rödenbeck, C., Ramonet, M., Carboni, G., and Santaguida, R. Comparing atmospheric transport models for future regional inversions over Europe – Part 1: mapping the atmospheric CO<sub>2</sub> signals. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(13):3461–3479, July 2007. doi: 10.5194/acp-7-3461-2007.
- Georgoulas, A. K., Papanastasiou, D. K., Melas, D., Amiridis, V., and Alexandri, G. Statistical analysis of boundary layer heights in a suburban environment. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 104(1-2): 103–111, April 2009. doi: 10.1007/s00703-009-0021-z.
- Gerbig, C., Körner, S., and Lin, J. C. Vertical mixing in atmospheric tracer transport models: error characterization and propagation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(3):591–602, February 2008. doi: 10.5194/acp-8-591-2008.
- Gryning, S.-E. and Batchvarova, E. Parametrization of the depth of the entrainment zone above the daytime mixed layer. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 120(515):47–58, January 1994. doi: 10.1002/qj.49712051505.
- Guicherit, R., Derwent, D., Grennfeldt, P. I., Jerre, J., Kley, D., Logan, J., Penkett, S., Prinz, B., and Taalas, P. The Regional Ozone Problem. In Isaksen, I. S. A., editor, *Tropospheric Ozone*, pages 403–411. Springer, 1988.
- Gurk, C. *Untersuchungen zur Verteilung von Kohlendioxid in der Tropopausenregion*. Diplomarbeit, 2003.
- Gurk, C., Fischer, H., Hoor, P., Lawrence, M., Lelieveld, J., and Wernli, H. Airborne in-situ measurements of vertical, seasonal and latitudinal distributions of carbon dioxide over Europe. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 8(2):7315–7337, April 2008. doi: 10.5194/acpd-8-7315-2008.
- Hägeli, P., Steyn, D. G., and Strawbridge, K. B. Spatial and temporal variability of mixed-layer depth and entrainment zone thickness. *Boundary-Layer Meteorology*, 96(1):47–71, 2000. doi: 10.1023/A:1002790424133.
- Handisides, G. M. *The Influence of Peroxy Radicals on Ozone Production*. Dissertation, 2001.
- Hanna, S., Yang, R., and Yin, X. Evaluations of numerical weather prediction (NWP) models from the point of view of inputs required by atmospheric dispersion models. *Int. J. of Environment and Pollution*, 14:98 – 105, 2000.

- Hanssen, R. F. High-Resolution Water Vapor Mapping from Interferometric Radar Measurements. *Science*, 283(5406):1297–1299, February 1999. doi: 10.1126/science.283.5406.1297.
- Hasel, M. T. *Strukturmerkmale und Modelldarstellung der Konvektion über Mittelgebirgen*. Dissertation, 2006.
- Hastings, D. A. and Dunbar, P. K. Global Land One-kilometer Base Elevation digital elevation model (Globe). *ISPRS Archives*, 32:218–221, 1998.
- Hennemuth, B. and Lammert, A. Determination of the Atmospheric Boundary Layer Height from Radiosonde and Lidar Backscatter. *Boundary-Layer Meteorology*, 120(1):181–200, January 2006. doi: 10.1007/s10546-005-9035-3.
- Henry, N. L. A Static Stability Index for Low-Topped Convection. *Weather and Forecasting*, 15(2): 246–254, 2000. doi: 10.1175/1520-0434(2000)015<0246:ASSIFL>2.0.CO;2.
- Hess, P. and Brezowsky, H. *Katalog der Großwetterlagen Europas*. Potsdam-Institut für Klimafolgenforschung, Offenbach a. Main., 1999.
- Holton, J. R. *An Introduction to Dynamic Meteorology*. Elsevier Academic Press, 4th edition, 2004.
- Holzworth, G. C. Estimates of the Mean Maximum depths in the contiguous united states. *Monthly Weather Review*, 92(5):235–242, May 1964. doi: 10.1175/1520-0493(1964)092<0235:EOMMMD>2.3.CO;2.
- Hoor, P. Seasonal variations of a mixing layer in the lowermost stratosphere as identified by the CO-O<sub>3</sub> correlation from in situ measurements. *Journal of Geophysical Research*, 107(D5):4044, 2002. doi: 10.1029/2000JD000289.
- Hov, O. and Flatoy, F. Convective Redistribution of Ozone and Oxides of Nitrogen in the Troposphere over Europe in Summer and Fall. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 28(1-3):319–337, 1997. doi: 10.1023/A:1005780730600.
- Huntrieser, H. Intercontinental air pollution transport from North America to Europe: Experimental evidence from airborne measurements and surface observations. *Journal of Geophysical Research*, 110 (D1):D01305, 2005. doi: 10.1029/2004JD005045.
- IPCC. *IPCC, 2007: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press,, United Kingdom and New York, 2007.
- Jonas, P. Observations of cumulus cloud entrainment. *Atmospheric Research*, 25(1-3):105–127, February 1990. doi: 10.1016/0169-8095(90)90008-Z.
- Kalthoff, N., Binder, H.-J., Kossmann, M., Vöggtlin, R., Corsmeier, U., Fiedler, F., and Schlager, H. Temporal evolution and spatial variation of the boundary layer over complex terrain. *Atmospheric Environment*, 32(7):1179–1194, April 1998. doi: 10.1016/S1352-2310(97)00193-3.
- Kalthoff, N., Träumner, K., Adler, B., Späth, S., Behrendt, A., Wieser, A., Handwerker, J., Madonna, F., and Wulfmeyer, V. Dry and moist convection in the boundary layer over the Black Forest - a combined analysis of in situ and remote sensing data. *Meteorologische Zeitschrift*, 22(4):445–461, August 2013. doi: 10.1127/0941-2948/2013/0417.
- Klein, H., Nickovic, S., Haunold, W., Bundke, U., Nillius, B., Ebert, M., Weinbruch, S., Schuetz, L., Levin, Z., Barrie, L. a., and Bingemer, H. Saharan dust and ice nuclei over Central Europe. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(21):10211–10221, November 2010. doi: 10.5194/acp-10-10211-2010.
- Köllner, F. *Charakterisierung und Einsatz eines flugzeuggetragenen Ozonmessgerätes in der Grenzschicht*. Diplomarbeit, Johannes-Gutenberg Universität Mainz, 2013.



- Kormann, R., Königstedt, R., Parchatka, U., Lelieveld, J., and Fischer, H. QUALITAS: A mid-infrared spectrometer for sensitive trace gas measurements based on quantum cascade lasers in CW operation. *Review of Scientific Instruments*, 76(7):075102, 2005. doi: 10.1063/1.1931233.
- Kossmann, M. and Fiedler, F. Diurnal momentum budget analysis of thermally induced slope winds. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 75(3-4):195–215, 2000. doi: 10.1007/s007030070004.
- Kossmann, M., Corsmeier, U., De Wekker, S. F., Fiedler, F., Vöglin, R., Kalthoff, N., Güsten, H., and Neininger, B. Observations of handover processes between the atmospheric boundary layer and the free troposphere over mountainous terrain. *Contributions to Atmospheric Physics*, 72:329–350, 1999.
- Koster, R. D., Mahanama, S. P. P., Yamada, T. J., Balsamo, G., Berg, a. a., Boissarie, M., Dirmeyer, P. a., Doblas-Reyes, F. J., Drewitt, G., Gordon, C. T., Guo, Z., Jeong, J.-H., Lawrence, D. M., Lee, W.-S., Li, Z., Luo, L., Malyshev, S., Merryfield, W. J., Seneviratne, S. I., Stanelle, T., van den Hurk, B. J. J. M., Vitart, F., and Wood, E. F. Contribution of land surface initialization to subseasonal forecast skill: First results from a multi-model experiment. *Geophysical Research Letters*, 37(2):n/a–n/a, January 2010. doi: 10.1029/2009GL041677.
- Krause, J. *CO<sub>2</sub>- und H<sub>2</sub>O-Messungen im Rahmen der DENCHAR Kampagne 2011*. Diplomarbeit, 2014.
- Kretschmer, R., Gerbig, C., Karstens, U., and Koch, F. Error characterization of CO<sub>2</sub> vertical mixing in the atmospheric transport model WRF-VPRM. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12:2441–2458, 2012. doi: 10.5194/acp-12-2441-2012.
- Kumar, S., Peterslidard, C., Tian, Y., Houser, P., Geiger, J., Olden, S., Lighty, L., Eastman, J., Doty, B., and Dirmeyer, P. Land information system: An interoperable framework for high resolution land surface modeling. *Environmental Modelling & Software*, 21(10):1402–1415, October 2006. doi: 10.1016/j.envsoft.2005.07.004.
- Kunz, M. *Synoptische Meteorologie, Leitfäden für die Ausbildung im Deutschen Wetterdienst Nr. 8*. 1990.
- Lee, T. R., De Wekker, S. F., Andrews, A. E., Kofler, J., and Williams, J. Carbon dioxide variability during cold front passages and fair weather days at a forested mountaintop site. *Atmospheric Environment*, 46:405–416, January 2012. doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.09.068.
- Lefohn, A. S., Wernli, H., Shadwick, D., Limbach, S., Oltmans, S. J., and Shapiro, M. The importance of stratospheric–tropospheric transport in affecting surface ozone concentrations in the western and northern tier of the United States. *Atmospheric Environment*, 45(28):4845–4857, September 2011. doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.06.014.
- Lelieveld, J., Barlas, C., Giannadaki, D., and Pozzer, a. Model calculated global, regional and megacity premature mortality due to air pollution. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(14):7023–7037, July 2013. doi: 10.5194/acp-13-7023-2013.
- LeMone, M. a., Tewari, M., Chen, F., Alfieri, J. G., and Niyogi, D. Evaluation of the Noah Land Surface Model Using Data from a Fair-Weather IHOP\_2002 Day with Heterogeneous Surface Fluxes. *Monthly Weather Review*, 136(12):4915–4941, December 2008. doi: 10.1175/2008MWR2354.1.
- Lemone, M. A. The Structure and Dynamics of Horizontal Roll Vortices in the Planetary Boundary Layer. *Journal of Atmospheric Sciences*, 30(6):1077 – 1091, 1973. doi: 10.1175/1520-0469(1973)030<1077:TSADOH>2.0.CO;2.
- Lemone, M. A., Zhou, M., Moeng, C.-H., Lenschow, D. H., Miller, L. J., and Grossman, R. L. An Observational Study of Wind Profiles in the Baroclinic Convective Mixed Layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 90(1):47–82, 1999. doi: 10.1023/A:1001703303697.
- Leuenberger, D., Stoll, M., and Roches, A. Description of some convective indices implemented in the COSMO model. Technical report, www.cosmo-model.org, 2010.

- Levin, I., Graul, R., and Trivett, N. B. A. Long-term observations of atmospheric CO<sub>2</sub> and carbon isotopes at continental sites in Germany. *Tellus B*, 47(1-2):23–34, February 1995. doi: 10.1034/j.1600-0889.47.issue1.4.x.
- LI-6262. CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O Analyzer - Operating and Service Manual, 1996.
- Lilly, D. K. On the Instability of Ekman Boundary Flow. *Journal of Atmospheric Sciences*, 23(5):481–494, 1966. doi: 10.1175/1520-0469(1966)023<0481:OTIOEB>2.0.CO;2.
- Lilly, D. K. Models cloud-topped mixed layers under a strong inversion. Technical Report July 1967, 1968.
- Lin, J., Brunner, D., Gerbig, C., Stohl, A., Luhar, A., and Webley, P. *Lagrangian Modeling of the Atmosphere*. American Geophysical Union, Washington D.C., vol. 200 edition, 2012.
- Liu, S. and Liang, X.-Z. Observed Diurnal Cycle Climatology of Planetary Boundary Layer Height. *Journal of Climate*, 23(21):5790–5809, November 2010. doi: 10.1175/2010JCLI3552.1.
- Liu, Y., Kuo, Y.-h., Sokolovskiy, S., and Guo, P. Comparison of atmospheric boundary layer structure as detected by COSMIC GPS radio occultation soundings and simulated by the WRF model. Technical Report January, 2008.
- Lock, A. P., Brown, A. R., Bush, M. R., Martin, G. M., Smith, R. N. B., Ock, A. P. L., Rown, A. R. B., Ush, M. R. B., and Artin, G. M. M. A New Boundary Layer Mixing Scheme . Part I : Scheme Description and Single-Column Model Tests. *Monthly Weather Review*, 128(9):3187–3199, 2000. doi: 493(2000)128<3187:ANBLMS>2.0.CO;2.
- Mahrt, L. Stably Stratified Atmospheric Boundary Layers. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 46(1): 23–45, January 2014. doi: 10.1146/annurev-fluid-010313-141354.
- Mahrt, L., Sun, J., Blumen, W., Delany, T., and Oncley, S. Nocturnal boundary-layer regimes. *Boundary-Layer Meteorology*, 88:255–278, 1998. doi: 10.1023/A:1001171313493.
- Malinowski, S. P., Haman, K. E., Kopec, M. K., Kumala, W., and Gerber, H. Small-scale turbulent mixing at stratocumulus top observed by means of high resolution airborne temperature and LWC measurements. *Journal of Physics: Conference Series*, 318(7):072013, December 2011. doi: 10.1088/1742-6596/318/7/072013.
- Malinowski, S. P., Gerber, H., Jen-La Plante, I., Kopec, M. K., Kumala, W., Nurowska, K., Chuang, P. Y., Khelif, D., and Haman, K. E. Physics of Stratocumulus Top (POST): turbulent mixing across capping inversion. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(24):12171–12186, December 2013. doi: 10.5194/acp-13-12171-2013.
- Massey, F. J. The Kolmogorov-Smirnov Test for Goodness of Fit. *Journal of the American Statistical Association*, 46(253):68, March 1951. doi: 10.2307/2280095.
- McKendry, I. and Lundgren, J. Tropospheric layering of ozone in regions of urbanized complex and/or coastal terrain: a review. *Progress in Physical Geography*, 24(3):329–354, July 2000. doi: 10.1177/030913330002400302.
- Moeng, C.-M., Sullivan, P. P., and Stevens, B. Including Radiative Effects in an Entrainment Rate Formula for Buoyancy-Driven PBLs. *Journal of Atmospheric Sciences*, 56:1031 – 1049, 1999.
- Moeng, C.-H. and Sullivan, P. P. A Comparison of Shear- and Buoyancy-Driven Planetary Boundary Layer Flows. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 51(7):999–1022, 1994. doi: 10.1175/1520-0469(1994)051<0999:ACOSAB>2.0.CO;2.
- Muir, L. C. and Reeder, M. J. Idealized modelling of landfalling cold fronts. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 136(653):2147–2161, 2010. doi: 10.1002/qj.692.

- Münel, C., Eresmaa, N., Räsänen, J., and Karppinen, A. Retrieval of mixing height and dust concentration with lidar ceilometer. *Boundary-Layer Meteorology*, 124(1):117–128, August 2007. doi: 10.1007/s10546-006-9103-3.
- Myers, T. a. and Norris, J. R. Observational Evidence That Enhanced Subsidence Reduces Subtropical Marine Boundary Layer Cloudiness. *Journal of Climate*, 26(19):7507–7524, October 2013. doi: 10.1175/JCLI-D-12-00736.1.
- Neuman, J. a., Trainer, M., Aikin, K. C., Angevine, W. M., Brioude, J., Brown, S. S., de Gouw, J. a., Dube, W. P., Flynn, J. H., Graus, M., Holloway, J. S., Lefer, B. L., Nedelec, P., Nowak, J. B., Parrish, D. D., Pollack, I. B., Roberts, J. M., Ryerson, T. B., Smit, H., Thouret, V., and Wagner, N. L. Observations of ozone transport from the free troposphere to the Los Angeles basin. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 117(D21):n/a–n/a, November 2012. doi: 10.1029/2011JD016919.
- NIST/SEMATECH. *e-Handbook of Statistical Methods*. <http://www.itl.nist.gov/div898/handbook/>, april 2012 edition, 2014.
- Oke, T. R. *Boundary Layer Climates*. Halsted Press, New York, 2nd edition, 1988.
- Parazoo, N. C., Denning, A. S., Kawa, S. R., Corbin, K. D., Lokupitiya, R. S., and Baker, I. T. Mechanisms for synoptic variations of atmospheric CO<sub>2</sub> in North America, South America and Europe. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(23):7239–7254, December 2008. doi: 10.5194/acp-8-7239-2008.
- Pasquill, F. The Estimation of the Dispersion of Windborne Material. *Meteorol. Mag.*, 90:33–49, 1961.
- Persson, A. Early operational Numerical Weather Prediction outside the USA: an historical introduction Part III: Endurance and mathematics 1965. *Meteorological Applications*, 12(04):381, December 2005. doi: 10.1017/S1350482705001933.
- Peters, W., Miller, J. B., Whitaker, J., Denning, a. S., Hirsch, a., Krol, M. C., Zupanski, D., Bruhwiler, L., and Tans, P. P. An ensemble data assimilation system to estimate CO<sub>2</sub> surface fluxes from atmospheric trace gas observations. *Journal of Geophysical Research*, 110(D24):D24304, 2005. doi: 10.1029/2005JD006157.
- Pino, D., Vilà-Guerau de Arellano, J., Peters, W., Schröter, J., van Heerwaarden, C. C., and Krol, M. C. A conceptual framework to quantify the influence of convective boundary layer development on carbon dioxide mixing ratios. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(6):2969–2985, March 2012. doi: 10.5194/acp-12-2969-2012.
- Purvis, R. M. Rapid uplift of nonmethane hydrocarbons in a cold front over central Europe. *Journal of Geophysical Research*, 108(D7):4224, 2003. doi: 10.1029/2002JD002521.
- Quass, U., John, A., and Kuhlbusch, T. Quellenzuordnung für Feinstaub in Hessen Frankfurt/Main und Kleiner Feldberg. Technical report, Instiut für Energie- und Umwelttechnik, 2009.
- Reiter, R. and Kanter, H. J. Time behavior of CO<sub>2</sub> and O<sub>3</sub> in the lower troposphere based on recordings from neighboring mountain stations between 0.7 and 3.0 km ASL including the effects of meteorological parameters. *Archives for Meteorology, Geophysics, and Bioclimatology Series B*, 30(3):191–225, March 1982. doi: 10.1007/BF02323361.
- Schneider, J. and Eixmann, R. Three years of routine Raman lidar measurements of tropospheric aerosols : Backscattering , extinction , and residual layer height. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2(4): 313–323, November 2002. doi: 10.5194/acp-2-313-2002.
- Scholz, F. W. and Stephens, M. A. K -Sample Andersonâ€™Darling Tests. *Journal of the American Statistical Association*, 82(399):918–924, September 1987. doi: 10.1080/01621459.1987.10478517.
- Schönwiese, C.-D. *Praktische Statistik für Meteorologen und Geowissenschaftler*. Borntraeger, 4 edition, 2006.

- Schulz, J. and Denhard, M. dphase\_lme: LME (COSMO-EU) model forecasts run by DWD for the MAP D-PHASE project. Technical report, World Data Center for Climate, 2009.
- Schulz, J. and Schättle, U. Kurze Beschreibung des Lokal-Modells Europa COSMO-EU (LME) und seiner Datenbanken auf dem Datenserver des DWD. Technical report, Deutscher Wetterdienst, 2009.
- Seibert, P., Beyrich, F., Gryning, S.-E., Joffre, S., Rasmussen, A., and Tercier, P. Mixing Height Determination for Dispersion Modelling: COST ACTION 710. Technical report, 1997.
- Seibert, P., Kromp-kolb, H., Kasper, A., Kalina, M., Puxbaum, H., Jost, D. T., Schwikowski, M., and Baltensperger, U. Transport of polluted boundary layer air from the Po Valley to high-alpine sites. *Atmospheric Environment*, 32(23):3953–3965, December 1998. doi: 10.1016/S1352-2310(97)00174-X.
- Seibert, P., Beyrich, F., Gryning, S.-E., Joffre, S., and Rasmussen, A. Review and intercomparison of operational methods for the determination of the mixing height. *Atmospheric Environment*, 34(7):1001–1027, 2000. doi: 10.1016/S1352-2310(99)00349-0.
- Seidel, D. J., Ao, C. O., and Li, K. Estimating climatological planetary boundary layer heights from radiosonde observations: Comparison of methods and uncertainty analysis. *Journal of Geophysical Research*, 115(D16):D16113, August 2010. doi: 10.1029/2009JD013680.
- Seinfeld, J. H. Urban air pollution: state of the science. *Science*, 243(4892):745–52, February 1989. doi: 10.1126/science.243.4892.745.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, N. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. Wiley & Sons, 2nd edition, 1997.
- Sinclair, V. A., Gray, S. L., and Belcher, S. E. Controls on boundary layer ventilation: Boundary layer processes and large-scale dynamics. *Journal of Geophysical Research*, 115(D11):D11107, June 2010. doi: 10.1029/2009JD012169.
- Sinclair, V. a., Belcher, S. E., and Gray, S. L. Synoptic Controls on Boundary-Layer Characteristics. *Boundary-Layer Meteorology*, 134(3):387–409, December 2009. doi: 10.1007/s10546-009-9455-6.
- Slade, D. H. *Meteorology and Atomic Energy*. Technical report, U.S. Department of Energy, Oak Ridge, TN, 1968.
- Smith, F. B. The role of wind shear in horizontal diffusion of ambient particles. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 92(393):427–427, July 1966. doi: 10.1002/qj.49709239315.
- Sönning, W. and Keidel, C. G. *Wolkenbilder, Wettervorhersage*. BLV Verlagsgesellschaft GmbH, 2007.
- Sorensen, J. H., Rasmussen, A., and Svensmark, H. Forecast of Atmospheric Boundary-Layer Height Utilised for ETEX Real-Time Dispersion Modelling. *Physics chemistry earth*, 1946(5):435–439, 1996.
- Stevens, B. On the Growth of Layers of Nonprecipitating Cumulus Convection. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 64(8):2916–2931, August 2007. doi: 10.1175/JAS3983.1.
- Stevens, B., Lenschow, D. H., Vali, G., Gerber, H., Bandy, A., Blomquist, B., Brenguier, J.-L., Bretherton, C. S., Burnet, F., Campos, T., Chai, S., Faloon, I., Friesen, D., Haimov, S., Laursen, K., Lilly, D. K., Loehrer, S. M., Malinowski, S. P., Morley, B., Petters, M. D., Rogers, D. C., Russell, L., Savic-Jovicic, V., Snider, J. R., Straub, D., Szumowski, M. J., Takagi, H., Thornton, D. C., Tschudi, M., Twohy, C., Wetzel, M., and van Zanten, M. C. Dynamics and Chemistry of Marine Stratocumulus—DYCOMS-II. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 84(5):579–593, May 2003. doi: 10.1175/BAMS-84-5-579.
- Stohl, A., Hittenberger, M., and Wotawa, G. Validation of the lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data. *Atmospheric Environment*, 32(24):4245–4264, December 1998. doi: 10.1016/S1352-2310(98)00184-8.

- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G. Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(9):2461–2474, September 2005. doi: 10.5194/acp-5-2461-2005.
- Stohl, A. and Thomson, D. J. A Density Correction for Lagrangian Particle Dispersion Models. *Boundary-Layer Meteorology*, 90(1):155–167, 1999. doi: 10.1023/A:1001741110696.
- Stohl, A. and Wotawa, G. A method for computing single trajectories representing boundary layer transport. *Atmospheric Environment*, 29(22):3235–3238, November 1995. doi: 10.1016/1352-2310(95)00259-2.
- Stohl, A., Haimberger, L., Scheele, M. P., and Wernli, H. An intercomparison of results from three trajectory models. *Meteorological Applications*, 8(2):127–135, June 2001. doi: 10.1017/S1350482701002018.
- Stohl, A., Eckhardt, S., Forster, C., James, P., Spichtinger, N., and Seibert, P. A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurements. *Atmospheric Environment*, 36(29):4635–4648, October 2002. doi: 10.1016/S1352-2310(02)00416-8.
- Stull, R. B. *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*. Springer Netherlands, Dordrecht, 1988. doi: 10.1007/978-94-009-3027-8.
- Stull, R. B. *Meteorology for Scientists and Engineers*. Earth Science Series. Brooks/Cole, 2000.
- Stull, R. B. A Fair-Weather Cumulus Cloud Classification Scheme for Mixed-Layer Studies. *Journal of Climate and Applied Meteorology*, 24(1):49 – 56, 1985. doi: 10.1175/1520-0450(1985)024<0049:AFWCCC>2.0.CO;2.
- Stull, R. B. Review of non-local mixing in turbulent atmospheres: Transient turbulence theory. *Boundary-Layer Meteorology*, 62(1-4):21–96, January 1993. doi: 10.1007/BF00705546.
- Sullivan, P. P., Moeng, C.-H., Stevens, B., Lenschow, D. H., and Mayor, S. D. Structure of the Entrainment Zone Capping the Convective Atmospheric Boundary Layer. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 55(19):3042–3064, October 1998. doi: 10.1175/1520-0469(1998)055<3042:SOTEZC>2.0.CO;2.
- Szintai, B., Kaufmann, P., and Rotach, M. W. Simulation of Pollutant Transport in Complex Terrain with a Numerical Weather Prediction–Particle Dispersion Model Combination. *Boundary-Layer Meteorology*, 137(3):373–396, October 2010. doi: 10.1007/s10546-010-9541-9.
- Taylor, K. E. Taylor Diagram Primer. Technical Report January, 2005.
- Thieser, J. *Atmospheric Reactive Nitrogen Chemistry via Cavity Ringdown Spectroscopy*. Dissertation, 2013.
- Tost, H., Jöckel, P., Kerkweg, A., Pozzer, A., Sander, R., and Lelieveld, J. Global cloud and precipitation chemistry and wet deposition: tropospheric model simulations with ECHAM5/MESSEy1. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(10):2733–2757, May 2007. doi: 10.5194/acp-7-2733-2007.
- Träumner, K., Kottmeier, C., Corsmeier, U., and Wieser, a. Convective Boundary-Layer Entrainment: Short Review and Progress using Doppler Lidar. *Boundary-Layer Meteorology*, 141(3):369–391, September 2011. doi: 10.1007/s10546-011-9657-6.
- Troen, I. B. and Mahrt, L. A simple model of the atmospheric boundary layer; sensitivity to surface evaporation. *Boundary-Layer Meteorology*, 37(1-2):129–148, October 1986. doi: 10.1007/BF00122760.
- Venkatram, A. Estimating the convective velocity scale for diffusion applications. *Boundary-Layer Meteorology*, 15(4):447–452, 1978. doi: 10.1007/BF00120606.
- Vickers, D. and Mahrt, L. Evaluating Formulations of Stable Boundary Layer Height. *Journal of Applied Meteorology*, 43(11):1736–1749, November 2004. doi: 10.1175/JAM2160.1.

- Vilà-Guerau de Arellano, J. Entrainment process of carbon dioxide in the atmospheric boundary layer. *Journal of Geophysical Research*, 109(D18):D18110, 2004. doi: 10.1029/2004JD004725.
- Vilà-Guerau de Arellano, J., van Heerwaarden, C. C., and Lelieveld, J. Modelled suppression of boundary-layer clouds by plants in a CO<sub>2</sub>-rich atmosphere. *Nature Geoscience*, 5(10):701–704, September 2012. doi: 10.1038/ngeo1554.
- Vogelezang, D. and Holtslag, A. Evaluation and model impacts of alternative boundary-layer height formulations. *Boundary-Layer Meteorology*, 81(3-4):245–269, 1996. doi: 10.1007/BF02430331.
- Wallace, J. M. and Hobbs, P. V. *Atmospheric Science An introductory survey*. Academic Press, 2006.
- Wang, J. and Rossow, W. B. Determination of Cloud Vertical Structure from Upper-Air Observations. *Journal of Applied Meteorology*, 34(10):2243–2258, 1995. doi: 10.1175/1520-0450(1995)034<2243:DOCVSF>2.0.CO;2.
- Warwick, H. and Doig, A. Smoke – the killer in the kitchen. Technical report, 2004.
- Weigel, R., Hermann, M., Curtius, J., Voigt, C., Walter, S., Böttger, T., Lepukhov, B., Belyaev, G., and Borrmann, S. Experimental characterization of the CONDensation PARTICle counting System for high altitude aircraft-borne application. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2(1):243–258, June 2009. doi: 10.5194/amt-2-243-2009.
- Weinzierl, B., Sauer, D., Esselborn, M., Petzold, A., Veira, A., Rose, M., Mund, S., Wirth, M., Ansmann, A., Tesche, M., Gross, S., and Freudenthaler, V. Microphysical and optical properties of dust and tropical biomass burning aerosol layers in the Cape Verde region-an overview of the airborne in situ and lidar measurements during SAMUM-2. *Tellus B*, 63(4):589–618, September 2011. doi: 10.1111/j.1600-0889.2011.00566.x.
- Wendling, J. *Bestimmung von Grenzschichthöhen aus Ceilometerdaten bei PARADE*. Diplomarbeit, 2012.
- Wernli, H. A lagrangian-based analysis of extratropical cyclones. II: A detailed case-study. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 123(542):1677–1706, July 1997. doi: 10.1002/qj.49712354211.
- Whiteman, C. D. *Mountain Meteorology - Fundamentals and Applications*. Oxford University Press, New York, 2000.
- WHO. *Air quality guidelines. Global update 2005. Particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide*. 2006.
- WHO. Review of evidence on health aspects of air pollution – REVIHAAP Project. Technical report, 2013.
- Wiegner, M., Madonna, F., Biniotoglou, I., Forkel, R., Gasteiger, J., Geiß, a., Pappalardo, G., Schäfer, K., and Thomas, W. What is the benefit of ceilometers for aerosol remote sensing? An answer from EARLINET. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(7):1979–1997, July 2014. doi: 10.5194/amt-7-1979-2014.
- Wieringa, J. Updating the Davenport roughness classification. *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, 41(1-3):357–368, October 1992. doi: 10.1016/0167-6105(92)90434-C.
- Wild, O. and Akimoto, H. Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three-dimensional global CTM. *Journal of Geophysical Research*, 106(D21):27729, November 2001. doi: 10.1029/2000JD000123.
- Wippermann, F. K., Etling, D., and Kirstein, H. On the instability of a planetary boundary layer with Rossby number similarity. *Boundary-Layer Meteorology*, 15(3):301–321, 1978. doi: 10.1007/BF02652603.

- WMO (World Meteorological Organization). Report of the Fourth WMO Meeting of Experts on the Quality Assurance/Science Activity Centers (QA/SACs) of the Global Atmospheric Watch. Technical report, World Meteorological Organization Global Atmospheric Watch, WMO/TD No. 689, No. 104, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 1995.
- Wobrock, W., Schell, D., Maser, R., Jaeschke, W., Georgii, H. W., Wiprecht, W., Arends, B. G., Mols, J. J., Kos, G. P. A., Fuzzi, S., Facchini, M. C., Orsi, G., Berner, A., Solly, I., Kruisz, C., Svenningsson, I. B., Wiedensohler, A., Hansson, H. C., Ogren, J. A., Noone, K. J., Hallberg, A., Pahl, S., Schneider, T., Winkler, P., Winiwarter, W., Colvile, R. N., Choularton, T. W., Flossmann, A. I., and Borrmann, S. The Kleiner Feldberg Cloud Experiment 1990. An overview. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 19(1-2):3–35, August 1994. doi: 10.1007/BF00696581.
- ZeitOnline. Schlimmster Smog des Winters verfinstert Peking, 2014. URL <http://www.zeit.de/wissen/umwelt/2014-01/smog-china-pekingshanghai>.
- Zeng, X., Brunke, M. A., Zhou, M., Fairall, C., Bond, N. A., and Lenschow, D. H. Marine Atmospheric Boundary Layer Height over the Eastern Pacific: Data Analysis and Model Evaluation. *Journal of Climate*, 17(21):4159–4170, November 2004. doi: 10.1175/JCLI3190.1.
- Zhang, Y., Gao, Z., Li, D., Li, Y., Zhang, N., Zhao, X., and Chen, J. On the computation of planetary boundary layer height using the bulk Richardson number method. *Geoscientific Model Development Discussions*, 7(3):4045–4079, June 2014. doi: 10.5194/gmdd-7-4045-2014.
- Zilitinkevich, S. and Baklanov, A. Calculation Of The Height Of The Stable Boundary Layer In Practical Applications. *Boundary-Layer Meteorology*, 105(3):389–409, 2002. doi: 10.1023/A:1020376832738.
- Zimmermann, H. . Field phase report of the TRACT field measurement campaign. Technical report, 1995.





# Abkürzungs- und Symbolverzeichnis

Abkürzung	Bezeichnung
BI	Bodennahe Inversion
CPC	Kondensationskernpartikelzähler
COSMO	Consortium for small-scale Modelling
DWD	Deutscher Wetterdienst
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
EZMW	Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersage
EZ	Einmischungsschicht
FI	gehobene Temperaturinversion
FT	Freie Troposphäre
GFS	Global Forecast System
RS	Residualschicht
GME	Globalmodell des DWD
GPS	Global Positioning System
GRIB	Gridded Binary
GSH	final kombinierte Grenzschichthöhe
GWL	Großwetterlage
HLUG	Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie
IZ	Inversionsschicht
KF	Kleiner Feldberg
LAT	Geographische Breite (engl. Latitude)
LON	Geographische Länge (engl. Longitude)
LPDM	Lagrangesches Partikel-Dispersionsmodell
MoLa	Mobile Labor
NN	Normalnull
NCEP	National Centers for Environmental Prediction, amerikanischer Wetterdienst
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
PARADE	PARticles and RADicals: Diel observations of the impact of urban and biogenic Emissions
PC	Parcel
PGS	Planetare Grenzschicht
PGSH	Planetare Grenzschichthöhe
OPC	Optischer Partikelzähler
RAS	Radiosonde
SBS	Stabile bodennahe Schicht
TKE	Turbulente kinetische Energie
u.G	über Grund
VOC	Flüchtige Organische Verbindungen

WMO	World Meteorological Organization
WRF	Weather Research and Forecasting Model
<hr/>	
Symbole	
$\Delta$	Systematischer Fehler
$\beta$	Stabilitätskriterium
$CO_2$	Kohlenstoffdioxid
$CO$	Kohlenstoffmonoxid
$\Delta_{norm}$	Normierter systematischer Fehler
$\sigma_{norm}$	Normierte Standardabweichung
$N_{CPC}$	Partikelanzahlkonzentration des CPC
$N_{OPC}$	Partikelanzahlkonzentration des OPC
$O_3$	Ozon
$q_v$	Spezifische Feuchte
$r$	Korrelationskoeffizient
$RH / RF$	Relative Feuchte
$RI_B$	Bulk-Richardson-Zahl
$RI_C$	Kritischer Schwellenwert der Bulk-Richardson-Zahl
$\Phi$	Wurzel des zentrierten mittleren quadratischen Fehlers
$\tau$	Aufenthaltszeit
$\theta$	Potentielle Temperatur
$\theta_v$	Virtuelle Potentielle Temperatur
$\theta_e$	Äquivalentpotentielle Temperatur
$u$	Horizontale Windgeschwindigkeit
$v$	Meridionale Windgeschwindigkeit
$WD$	Windrichtung
$WS$	Windgeschwindigkeit
<hr/>	
Einheiten	
ccm	Kubikzentimeter
DEG	Grad ( $^{\circ}C$ , engl. degree)
hPa	Hektopascal
$^{\circ}C$	Grad Celsius
K	Kelvin
ppmv	parts per million per volume ( $10^{-6}$ )
ppbv	parts per billion per volume ( $10^{-9}$ )
SLM	Standard Liter pro Minute
UTC	Koordinierte Weltzeit

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Schematische Darstellung zur Bestimmung der Flussrichtung für den Wärmefluss für den vertikalen Transport der mittleren potentiellen Temperatur. Luftpakete steigen (sinken) adiabatisch in die neue Umgebung ohne Mischung und sorgen für eine Umverteilung der Luftmassen: a) Labile Schichtung, b) Stabile Schichtung nach Stull (2000). . . . .	5
1.2	Tagesgang der virtuellen potentiellen Temperatur im idealisierten Grenzschichtmodell nach Stull (1988). . . . .	7
1.3	Bezeichnung der einzelnen Schichten der planetaren Grenzschicht, erweitert durch die typischen Prozesse, die zum Grenzschichtwachstum beitragen; thermische Hebung (dünne Pfeile), Einmischung aus der RS/FT (dicke Pfeile) und Turbulenz in der PGS (Kreise). . .	7
1.4	Untergliederung der atmosphärischen Grenzschicht und idealisierte Mittelwerte der potentiellen Temperatur $\theta_v$ , der Windgeschwindigkeit $V = u^2 + v^2$ , der spez. Feuchte $q_v$ und für einen Tracer mit Quellen am Boden $C$ nach Driedonks and Tennekes (1984). Die Höhe der planetaren Grenzschicht (PGSH) liegt bei ca. 1 km. . . . .	8
1.5	Links: Definition der Einmischungszone (EZ) aus dem Verhältnis des Betrags von Luftmassen aus der freien Troposphäre (FT). Rechts: Verhältnis von Luftmassen aus der Grenzschicht, freien Troposphäre und vermischten Luftmassen in der Einmischungszone im Verhältnis zur Grenzschichthöhe nach Stull (1988). . . . .	9
1.6	Schematische Darstellung von photochemischen Gleichgewicht zwischen Ozon mit Stickoxiden (grüne Pfeile). Erhöhte Ozonproduktion durch zusätzliche Peroxyradikalen ( $RO_2$ ) in der Troposphäre (blaue Pfeile). . . . .	10
1.7	Tageszeitliche Entwicklung der Windstrukturen über einem komplexen Gelände: a) Nachmittag, b) Nacht, c) Sonnenaufgang und d) Morgen. Die gewellten Pfeile stellen die Konvektion dar, die blauen Pfeile die Windrichtung. Die Höhe der Einmischungszone (EZ) markiert die Oberkante der Grenzschicht nach Whiteman (2000). . . . .	12
1.8	Schematische Darstellung der Grenzschichthöhe beeinflusst durch die synoptische Situation. Im Querschnitt die Frontstrukturen, die zugehörigen Wolkentypen und der Einfluss auf die bodennahen Luftmassen zusammengefasst aus Slade (1968); Stull (1988); Whiteman (2000); Sönning and Keidel (2007). . . . .	13
1.9	Modellsimulationen von Einmischung (dunkelorange) aus der freien Troposphäre (orange) in die Grenzschicht (blau) über einen Simulationszeitraum von 6 Minuten. Die Pfeile zeigen die Bewegungsrichtung des Fluids aus Sullivan et al. (1998). . . . .	14
2.1	Messprinzip des Licors LI-6262. Die Abbildung ist im Text erläutert. . . . .	18
2.2	Zusammenhang zwischen dem Messsignal, $CO_2$ -Mischungsverhältnis und dem Polynom $F(V)$ . . . . .	18
2.3	Radiosonde DFM-06 der Firma GRAW. . . . .	19
2.4	Schematische Skizze zur Demonstration der Position der Einlässe. . . . .	20
2.5	Mittelung der sekundlichen Ozonmessungen (schwarz) auf 3 Sekunden (orange), b) Ausschnitt zur Demonstration der Zeitverschiebung von $q_v$ zwischen Enviscope und dem Instrument FABLE vor und nach der Zeitkorrektur. . . . .	21
3.1	Links: Blick von oben auf das Rhein-Main-Gebiet. Rechts: Topographie um den Kleinen Feldberg. . . . .	28
3.2	Messturm auf dem KF und der Einlass zur $CO_2$ -Messung. . . . .	28

3.3	Dargestellt sind Rückwärtstrajektorien, ausgehend vom KF in 1500 m Höhe für jeden Kampagnentag um 12 UTC, die mit FLEXTRA bis zu 48 Stunden zurückverfolgt wurden. Die Farben stellen die subjektiv eingeteilten Luftmassenherkunftskategorien England (cyan), lokal/stagnierend (magenta), kontinental/Südeuropa (orange), Mittelmeer/Südeuropa (grün), sowie Atlantik (schwarz) dar nach Hess and Brezowsky (1999). . . . .	30
3.4	Zeitreihe (a) 2m-Temperatur und relative Feuchte (DWD), (b) Windgeschwindigkeit und Windrichtung in 10 m Höhe (Turmmessung), (c) die Globalstrahlung (HLUG) und Niederschlag (MoLa). Die Schattierungen markieren die verschiedenen Hoch- und Tiefdruck-Perioden. . . . .	31
3.5	Wettersituation am 15.08.2011 0 UTC. Links: Geopotentielle Höhe der 500 hPa Fläche, reduzierter Bodendruck auf Normal Null. Die Farbskala gibt die Schichtdicke in gdm an. Die Abbildung basiert auf Reanalysen des GFS-Modells (www.wetter3.de). Mitte: Bodendruckkarte des DWD, erweitert mit den Namen der Zyklonen (www.wetterpate.de). Rechts: Lokale Beobachtung vom Kleinen Feldberg gegen Mittag. . . . .	32
3.6	Wie Abb. 3.5 für den 19.08.2011 0 UTC. . . . .	32
3.7	Wie Abb. 3.5 für den 23.08.2011 0 UTC. . . . .	33
3.8	Wie Abb. 3.5 für den 26.08.2011 0 UTC. . . . .	33
3.9	Wie Abb. 3.5 für den 31.08.2011 0 UTC. . . . .	34
3.10	Wie Abb. 3.5 für den 04.09.2011 0 UTC. . . . .	34
3.11	Häufigkeitsverteilung der Differenz aus den mittleren Referenz-Kalibrationen und den Sollwerten der Kalibrationen ( $\Delta\text{CO}_2 = \text{CO}_2(\text{Istwert}) - \text{CO}_2(\text{Sollwert})$ ). . . . .	36
4.1	Schema zur Problematik der Grenzsschichthöhen- und Stabilitätsbestimmung bei unbekanntem Temperaturgradienten oberhalb der bodennahen Schicht. . . . .	42
4.2	a) Temperaturprofil aus den Rohdaten (digitalisiert), die überarbeiteten Daten (orange) und die repräsentative Bodentemperatur aus den RAS (rot) und aus der DWD-Wetterhütte (grün). b) Korrelation zwischen diesen beiden bodennahen Temperaturen für alle RAS-Aufstiege (Punkte), 1:1 Linie (schwarz gestrichelt), Regressionsgerade (rot). . . . .	43
4.3	a) Häufigkeitsverteilung und b) zeitliche Verteilung von $\beta$ zu den Zeitpunkten der Radiosondenaufstiege. Eine stabile Schichtung (schwarz) liegt vor, wenn $\beta > 0$ ist, sonst liegt eine labile Schichtung (orange) vor. . . . .	44
4.4	Zeitlicher Verlauf der PGSH kombiniert aus verschiedenen Methoden und die vertikale Struktur der äquivalentpotentiellen Temperatur aus den Radiosondenaufstiegen. . . . .	45
4.5	Vertikalprofile von verschiedenen gemessenen und abgeleiteten Variablen der Radiosonde am 06.09.2011 14:02 UTC. Zusätzlich sind aus verschiedenen Methoden abgeleitete Grenzschichthöhen und die „finale“ PGSH eingezeichnet und in der Legende notiert. . . . .	46
4.6	Wie Abb. 4.5 für den Radiosondenaufstieg am 29.08.2011 15:03 UTC. . . . .	46
4.7	Wie Abb. 4.5 für den Radiosondenaufstieg am 23.08.2011 05:13 UTC. . . . .	47
4.8	Wie Abb. 4.5 für den Radiosondenaufstieg am 23.08.2011 12:03 UTC. . . . .	47
4.9	Kumulative Häufigkeit der berechneten Grenzschichthöhen nach den verwendeten Methoden. Die Farben geben verschiedene Höhenbereiche an. Werden keine 100 % erreicht, konnte unter bestimmten Bedingungen keine Grenzschichthöhe bestimmt werden (z.B. lässt sich die Paket-Methode unter stabilen Bedingungen nicht nutzen). . . . .	48
4.10	Vergleich der PGSH aus der $RI_B$ -Methode mit der Parcel-Methode nur unter labilen Bedingungen. . . . .	49
4.11	Links: Korrelation der Grenzschichthöhen mit der $RI_B$ -Methode ( $RI_C = 0.38$ ) und mit alternativen Schwellenwerten. Rechts: Differenz zwischen den Grenzschichthöhen mit $RI_C = 0.38$ und den weiteren Schwellenwerten dargestellt als Box-Whisker-Plot. Die Länge der Whisker beinhaltet zu 95 % alle Daten. Eine detaillierte Erklärung findet sich im Anhang. . . . .	50
4.12	Übereinstimmung zwischen der PGSH mit der $RI_B$ -Methode und den verschiedenen Methoden mit absoluter Differenz von maximal 100 m. Die Zuteilung der Schattierungen ist der Legende zu entnehmen, die Abkürzungen der Tabelle 3.2. . . . .	51

4.13	Häufigkeitsverteilung der Qualität aller bestimmten Grenzschichthöhen in Abhängigkeit der atmosphärischen Stabilität. $QF = 0$ bedeutet eine Übereinstimmung der PGSH von mindestens drei Methoden mit einer Differenz von weniger als 50 m und $QF = 4$ kleiner gleich 125 m. Siehe Tabelle 4.3 für mehr Details. . . . .	53
4.14	Vergleich der GSH in Abhängigkeit der Stabilität und der maximalen relativen Feuchte bis 4 km über Grund für die gesamte Messkampagne. . . . .	54
4.15	Häufigkeitsverteilung der GSH in Abhängigkeit der Maximalfeuchte, welche repräsentativ für das Vorhandensein von Wolken ist. . . . .	54
4.16	Zusammenhang zwischen der GSH und dem Temperaturgradienten über die ersten 100 m. Die Farben geben Tages- und Nachtwerte an. . . . .	55
4.17	Häufigkeitsverteilung der GSH über dem KF unter stabilen (a-c) und labilen (d-f) Bedingungen; eingeteilt in verschiedene Temperaturklassen. Die Stabilität wurde mit dem Stabilitätskoeffizienten $\beta$ bestimmt. . . . .	56
4.18	Wie Abb. 4.17 für verschiedene Windgeschwindigkeitsklassen. . . . .	57
4.19	Häufigkeitsverteilung der GSH über dem KF zu a) stabilen und b) labilen Bedingungen, eingeteilt in die Windrichtung. Die Stabilität wurde mit dem Stabilitätskoeffizienten $\beta$ bestimmt. . . . .	58
4.20	Korrelation der Temperaturdifferenz zwischen den ersten 500 m über Grund und der GSH. Warme Perioden sind orange und kalte Perioden schwarz dargestellt. . . . .	59
4.21	Zeitlicher Verlauf der GSH (oben) und des $\text{CO}_2$ -Mischungsverhältnisses (unten) gemessen auf dem KF. Lücken in der $\text{CO}_2$ -Zeitreihe aus Mainz werden durch die Messungen von MoLa (siehe Kapitel 3) ergänzend dargestellt. Die grauen Flächen markieren die Kaltperioden, weiße die Warmperioden. . . . .	61
4.22	Häufigkeitsverteilung des $\text{CO}_2$ -Mischungsverhältnisses in Abhängigkeit von 8 Windsektoren am Taunus Observatorium. Zusätzlich sind die Luftmassen separiert zwischen der Kaltperiode (schwarz) und Warmperiode (orange). Die unterschiedliche Skalierung ist zu beachten. . . . .	62
4.23	$\text{CO}_2$ -Tagesmittelwerte und die dazugehörige Standardabweichung während der Messkampagne PARADE auf dem KF. Die Schattierung markiert Warmluftperioden (weiß) und Kaltluftperioden (grau) (vgl. Abb. 4.4) . . . . .	63
4.24	Dargestellt sind Rückwärtstrajektorien, ausgehend vom KF in 500 m Höhe für jeden Kampagnentag um 12 UTC, die mit FLEXTRA bis zu 72 Stunden zurückverfolgt wurden. Die Farben stellen die Tagesmittelwerte der $\text{CO}_2$ -Messungen vom KF dar (vgl. Abb.4.23). . . . .	63
5.1	Schematische Darstellung der Datenaufbereitung zum direkten Vergleich der Modelldaten mit den Beobachtungen aus den Radiosonden. . . . .	66
5.2	Zeitreihen der Grenzschichthöhe (PGSH, über Grund) für Radiosonden (Dreiecke), COSMO-7 (rot), COSMO-EU (blau), COSMO-DE (grau), COSMO-DE25 (braun) während der Messkampagne PARADE. . . . .	66
5.3	Zeitreihen der PGSH für Radiosonden (Dreiecke), COSMO-7 (rot), COSMO-EU (blau), COSMO-DE (grau), Ceilometer (violett) für den 01.09.2011. . . . .	67
5.4	Taylordiagramm zum statistischen Vergleich der PGSH aus den Radiosonden und den numerischen Vorhersagemodellen COSMO-7, COSMO-EU und COSMO-DE: (links) am Tag (rechts) in der Nacht. . . . .	68
5.5	Beobachtungen (schwarz) in 10 m Höhe über Grund von a) Temperatur, b) spezifischer Feuchte, c) Windgeschwindigkeit (WS) und d) Windrichtung (WD) während der Messkampagne PARADE. Zum Vergleich die gemittelten und interpolierten Werte für die Modelle COSMO-7 (rot), COSMO-EU (blau) und COSMO-DE (braun, Mittelwert über 25 Gitterpunkte) auf der ersten Modellschicht (10 m über Grund). . . . .	69

5.6	Beobachtungen aus den Radiosonden und Modelldaten von COSMO-7, COSMO-EU, COSMO-DE wurden auf ein einheitliches Vertikalgitter interpoliert und folgende Parameter wurden berechnet: (oben) mittlere Vertikalprofile, (zweite Reihe) Standardabweichung, (dritte Reihe) systematische Abweichung und (unten) die Wurzel des zentrierten mittleren quadratischen Fehlers $\Phi$ für die Temperatur (a, e, i, m), spezifische Feuchte (b, f, j, n), den zonalen Wind (c, g, k, o) und meridionalen Wind (d, h, l, p). . . . .	70
6.1	Das Flugprofil am 06.09.2011 als ein Beispiel für das typische Flugprofil während der Messkampagne PARADE über dem KF. Die Topographie basiert auf dem Projekt „The Global Land One-km Base Elevation Project (GLOBE)“ in 1 km horizontaler Auflösung (Hastings and Dunbar, 1998). . . . .	74
6.2	Ursprung der Luftmassen bis zu 72 Stunden erfasst mit Rückwärtstrajektorien, berechnet mit LAGRANTO und den meteorologischen Feldern von COSMO-7 entlang des Flugwegs oberhalb von 2000 m für die Flüge: 20110831 (blau), 20110902a (rot), 20110902b (grün), 20110906a (cyan) und 20110906b (magenta). . . . .	75
6.3	Zeitreihen von a) $\theta$ und der Höhe, b) $\text{CO}_2$ und $\text{CO}$ , c) $\text{O}_3$ und $q_v$ , d) $N_{OPC}$ und $N_{CPC}$ des Fluges 20110831. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert. . . . .	76
6.4	Zeitreihen von a) $\theta$ und der Höhe, b) $\text{CO}_2$ und $\text{CO}$ , c) $\text{O}_3$ und $q_v$ , d) $N_{OPC}$ und $N_{CPC}$ des Fluges 20110902a. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert. . . . .	77
6.5	Zeitreihen von a) $\theta$ und der Höhe, b) $\text{CO}_2$ und $\text{CO}$ , c) $\text{O}_3$ und $q_v$ , d) $N_{OPC}$ und $N_{CPC}$ des Fluges 20110902b. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert. . . . .	78
6.6	Zeitreihen von a) $\theta$ und der Höhe, b) $\text{CO}_2$ und $\text{CO}$ , c) $\text{O}_3$ und $q_v$ , d) $N_{OPC}$ und $N_{CPC}$ des Fluges 20110906a. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert. . . . .	79
6.7	2D-Ansicht der Vertikalprofile von Flug 20110906a 08:28 UTC (weiß) und 08:45 UTC (orange). Rückwärtstrajektorien (grün) zeigen die Stromrichtung und werden durch die Zugbahn der Radiosonde (gelb) bestätigt. Die Startposition der Radiosonde wurde dabei zum Mittelpunkt des ersten Vertikalprofils verschoben. . . . .	80
6.8	Vertikalprofile von a) $\text{CO}_2$ , b) $\text{O}_3$ , c) $\theta_v$ , d) $q_v$ , e) $N_{CPC}$ , f) $N_{OPC}$ , g) $\text{CO}$ , h) $\theta_e$ vom Flug 20110906a um 08:28 (schwarz) und um 08:45 UTC (orange). . . . .	80
6.9	Mittelung jedes Vertikalprofiles in 200-m-Intervallen und zeitliche Überlagerung für den jeweiligen Flug. Vertikalprofile von $N_{OPC}$ (a), $\text{O}_3$ (b), $\text{CO}_2$ (c) und $q_v$ (d) der Flüge: 20110831 (blau), 20110902a (rot), 20110902b (grün), 20110906a (cyan) und 20110906b (magenta) über dem KF. . . . .	82
6.10	Flugzeugmessungen von $\theta_v$ , $\text{CO}_2$ und $N_{OPC}$ eingefärbt mit der relativen Feuchte (RF) über dem KF am 02.09.11 gegen 11:32 UTC. . . . .	83
6.11	Radiosondenmessungen von $\theta_v$ , Windgeschwindigkeit und Windrichtung eingefärbt mit der relativen Feuchte (RF) über dem KF am 02.09.11 um 12:02 UTC. . . . .	83
6.12	Vertikalprofile von a) $\theta_v$ und b) Ozon gemessen durch IAGOS (schwarz), Flugzeug (orange), Radiosonde (grün). . . . .	84
6.13	Meteorologische Situation am 01.09.2011 über Westeuropa. Links: Satellitenbild kombiniert aus verschiedenen Kanälen ( <a href="http://ladsweb.nascom.nasa.gov">http://ladsweb.nascom.nasa.gov</a> ), rechts: Ausschnitt der Bodendruckkarte des Deutschen Wetterdienstes. Die Kombination beider Bilder zeigt Wolken an der Warmfront. . . . .	85
6.14	a) Frontenanalyse mit der Darstellung der äquivalentpotentiellen Temperatur auf 850 hPa. Die weiße Konturlinie markiert die 320-K-Fläche, trennt die wärmeren Luftmassen (rot) von den kühleren Luftmassen (blau) und markiert somit den Übergangsbereich der Warmfront. b) Wolkenbedeckung während des Fluges 20110902a um 11:39 UTC. Blickrichtung Westen. Einkreist ist das Flugzeug. . . . .	85

6.15	Meteorologische Situation vom 01.09.2011 bis 03.09.2011 auf dem KF. Der rote Kasten markiert den Zeitraum, an dem die Warmfront den KF überquert. . . . .	86
6.16	a) Ursprung der Luftmassen dargestellt mit Rückwärtstrajektorien, basierend auf COSMO-7 bis zu 72 Stunden entlang des Flugprofils 20110902b, enden oberhalb von 1000 m an der Messregion. In Farbe die Höhe der Trajektorien der letzten 24 Stunden (enden oberhalb von 2000 m). b) Position der Trajektorien 24 Stunden vor dem Erreichen der Messregion (enden oberhalb von 2000 m) während des Fluges 20110902b. . . . .	87
6.17	Aufenthaltszeit der Trajektorien integriert über den gesamten Simulationszeitraum von 72 Stunden, basierend auf COSMO-7. Dargestellt ist die Aufenthaltszeit in den unteren 500 m (links) und die Aufenthaltszeit über die gesamte Vertikalsäule (rechts). . . . .	87
6.18	Zeitlicher Transport der ozonarmen und ozonreichen Luftmassen basierend auf den Rückwärtstrajektorien während des Fluges 20110902b. Die Ozonmessungen vom Flugzeug wurden dazu mit den Trajektorien überlagert und auf eine Karte in LON-Z für drei Zeitschritte gelegt. Alle Datenpunkte innerhalb einer Box wurden gemittelt. . . . .	89
6.19	Simulierte und integrierte Aufenthaltszeit ( $\tau$ ) a) für bodennahe Luftmassen und b) über die gesamte Vertikalsäule. Die Partikel (P) wurden im Flugbereich (Z) zwischen 1500 - 2500 m über den Flugzeitraum (R) von 20110902a und 20110902b freigesetzt. Der Simulationszeitraum beträgt 72 Stunden und basiert auf den meteorologischen Feldern von COSMO-7. . . . .	91
6.20	Simulierte und integrierte Aufenthaltszeit ( $\tau$ ) für a) bodennahe Luftmassen und b) über die gesamte Vertikalsäule. Die Partikel (P) wurden im Flugbereich (Z) zwischen 1500 - 2500 m über den Flugzeitraum (R) von 20110902a und 20110902b freigesetzt. Der Simulationszeitraum beträgt 72 Stunden und basiert auf den meteorologischen Feldern von COSMO-EU. . . . .	91
6.21	Die berechnete Grenzschichthöhe mit FLEXPART am 02.09.2011 12 UTC mit a) COSMO-7 und b) COSMO-EU. . . . .	92
6.22	Schematische Darstellung der Interaktion einer Partikelwolke unter Berücksichtigung der Grenzschichthöhe. . . . .	93
6.23	Zeitreihen von COSMO-7 (orange) und COSMO-EU (schwarz): a) Grenzschichthöhe basierend auf FLEXPART, b) $u_*$ , c) $q_v$ , d) $T$ , e) $U$ , f) $V$ . Deutliche Differenzen sind in der Grenzschichthöhe und spez. Feuchte zu erkennen. . . . .	94
6.24	Korrelationen zwischen den Differenzen (COSMO-7 und COSMO-EU) von a) $q_v$ , b) $u_*$ , c) $T$ , d) $U$ gegen die Differenz der Grenzschichthöhe beider Modelle. Die Farben zeigen Tages- (06 - 18 UTC) bzw. Nachtwerte (18 - 06 UTC) an. Die Differenzen zwischen der $q_v$ und der PGSH zeigen eine eindeutige Antikorrelation am Tag an. . . . .	95
7.1	Tagesgang der detektierten PGSH mit Radiosonden (schwarz) und dem Ceilometer (rot, stündlich gemittelt). Die Abgrenzung zwischen der turbulenten Grenzschicht und der stabilen FT ist mit der Bulk-Richardson-Zahl $RI_B$ (grau schattiert) dargestellt. Die Höhe der Residualschicht (RS) wurde subjektiv mit Radiosonden (schwarz gestrichelt) und dem Ceilometer (rot) bestimmt. Wolken sind zu den verschiedenen Zeitpunkten eingezeichnet. Die Zeiträume der Flugprofile (orange) und Wolken (blaue Kreise) sind zusätzlich eingetragen. . . . .	98
7.2	Links: Bodendruckkarte des Deutschen Wetterdienstes vom 06.09.2011 12 UTC. Rechts: Aufnahme der Wolkenformation aus dem Flugzeug um 11.32 UTC. Die Pfeile geben die Zugbahn der Wolkenstraßen an. . . . .	99
7.3	Zeitreihen von a) $\theta$ und der Höhe, b) $CO_2$ und $CO$ , c) $O_3$ und $q_v$ , d) $N_{OPC}$ und $N_{CPC}$ des Fluges 20110906b. Vertikalprofile über dem KF sind in den roten Kästen markiert. . . . .	100
7.4	Messungen von $CO_2$ gegen $O_3$ , während das Flugzeug gegen 11:42 UTC spiralförmig von der freien Troposphäre (FT) in die Grenzschicht (PBL) über dem KF flog. Die Datenpunkte innerhalb der Ellipse liegen zwischen 1640 und 2200 m und entstehen durch Mischung. Die spezifische Feuchte markiert Luftmassen in der PBL ( $> 4$ g/kg) und FT ( $< 2$ g/kg). . . . .	102

7.5	Wie Abbildung 7.4. Links: Vor dem Mischungszeitpunkt um 07:42 UTC. Die Luftmassen unterhalb von 1000 m befinden sich in der stabilen bodennahen Schicht (SBS) unterhalb der Residualschicht (RS). Rechts: Nach dem Mischungszeitpunkt um 13:12 UTC. . . . .	102
7.6	Vertikalprofile von O <sub>3</sub> um a) 07:27 UTC, b) 11:42 UTC, c) 13:12 UTC. Die Farben geben die spez. Feuchte, die Grenzschichthöhe (schwarze Linie) und Residualschichthöhe (graue Linie) an. Die Pfeile weisen die verschiedenen meteorologischen Prozesse auf und sind in den Textbausteinen erklärt. . . . .	103
7.7	Wie Abb. 7.6 für CO <sub>2</sub> . . . . .	103
7.8	Rechts: Konvektion und Einmischungsprozesse in einer konvektiven Grenzschicht (Hägeli et al., 2000). Links: Übertragung der Prozesse auf die Entstehung von Wolkenstraßen. . .	104
7.9	a) Ursprung der Luftmassen zwischen 1640 - 2200 m (Mischungslinie) für die drei Vertikalprofile. b) Aufenthaltszeit der Luftmassen basierend auf FLEXPART-COSMO-7-Simulationen, überlagert mit den Trajektorien aus a) in grau. . . . .	107
7.10	2D-Schnitt der Trajektorien aus Abb.7.9 zu den verschiedenen Zeiten in dem Bereich der Mischungslinie: a) Z - Zeit, b) normierte potentielle Temperatur auf die PGSH - Zeit. . . .	107
7.11	Zeitlicher Transport der ozonarmen und ozonreichen Luftmassen basierend auf den Rückwärtstrajektorien während Flug 20110906a und 20110906b. Die Ozonmessungen vom Flugzeug wurden dazu mit den Trajektorien überlagert und auf eine Karte in Lon-Z für 3 Zeitschritte gelegt. Datenpunkte innerhalb einer Box wurden gemittelt. Zu beachten ist, dass die Luftmassen zum Teil bereits 24 Stunden später das Modellgebiet verlassen haben (rechts oben).	108
7.12	Ozonmessungen (UV-Absorption (schwarz) und DOAS (orange)) auf und um den Kleinen Feldberg mit dem Flugzeug am 06.09.2011. Zur Übersicht sind die verschiedenen Schichttypen der PGS eingezeichnet. Der sprunghafte Anstieg von O <sub>3</sub> am Boden während der Übergangsphase am Mittag (10 UTC), wird wahrscheinlich durch die Einmischung von ozonreichen Luftmassen aus der freien Troposphäre und der Residualschicht forciert. . . .	109
8.1	Übereinstimmung der Residualschichthöhe über den zeitlicher Verlauf des korrigierten Aerosolrückstreusignals (gemittelt über 60 m in der Höhe und 5 Minuten in der Zeit), des Temperaturgradienten berechnet aus den meteorologischen Daten von COSMO-DE (schwarz) und $\theta_v$ -Profile berechnet aus den Radiosondenmessungen (blau). . . . .	113
2	Links: Schema eines Taylordiagramms. Die Beobachtung (schwarzer Punkt) wird gegen die Analyse (roter Punkt) untersucht. Die Standardabweichung der Beobachtung (schwarze Linie) und des Modells (blaue Linie) ist dargestellt. In der Verlängerung der blauen Linie ist der Korrelationskoeffizient aufgetragen, der durch den Arkussinus aufgespannt wird. $\Phi$ ist durch die grüne Linie dargestellt. b) Schema eines Box-Whisker-Plot mit verschiedenen Kennwerten. . . . .	140



# Tabellenverzeichnis

1.1	Zusammenhang zwischen der Temperaturschichtung und der Bulk-Richardson-Zahl. . . . .	6
2.1	Eigenschaften der Radiosonde DFM-06 der Firma GRAW. . . . .	19
2.2	Übersicht über die Zeitverschiebung aller Spurengasmessungen zur Referenzzeit (Flugzeugmessungen) für alle Flüge. . . . .	21
2.3	Übersicht der flugzeuggetragenen Instrumente. Ausführliche Beschreibungen sind in den Quellen und im Anhang gegeben. Fußnoten [1]: Standard Liter pro Minute, [2]: bei CO = 100 .ppbv, [3]: bei O <sub>3</sub> <100 ppbv und nur für trockene Luft. . . . .	22
2.4	Vertikalschichten der verschiedenen COSMO-Versionen bis 5 km Höhe über Grund. . . . .	24
3.1	Zusammenfassung der Wetterklassifizierung (Periode (P), Datum (D), Hauptanströmungsrichtung (HAR) auf 700 hPa, mittlere Zyklonalität (Z) auf 950 hPa und 500 hPa (a = antizyklonal, z = zyklonal), die mittlere Feuchtigkeit (F)) nach Bissolli and Dittmann (2001), die Luftmassenherkunft (LH) nach Hess and Brezowsky (1999) und die vorherrschenden lokalen Bedingungen (LB) während der Messkampagne PARADE im Spätsommer 2011. Ein Wechsel der Bedingungen wird mit einem „/“ dargestellt. Zum Beispiel: feucht auf trocken (f / t). . . . .	29
3.2	Zusammenfassung der Grenzschichthöhenkriterien . . . . .	39
4.1	In der oberen rechten Ecke ist der Spearman-Korrelationskoeffizient gegeben. In der unteren Ecke ist die dazu gehörige statistische Signifikanz eingetragen, welche gegeben ist, wenn die Werte kleiner als 0.05 % sind. . . . .	49
4.2	Bestimmung des Vektors $\Delta GSH_0$ basierend auf der Arbeit von Beyrich and Leps (2012). .	52
4.3	Bestimmung der Qualität der detektierten PGSH mit verschiedenen Kriterien nach Beyrich and Leps (2012). Eine detaillierte Beschreibung ist im Text gegeben. . . . .	52
5.1	Übersicht über den normierten systemematischen Fehler $\Delta_{norm}$ und normierte Standardabweichung $\sigma_{norm}$ zwischen der PGSH aus den Radiosonden und der PGSH aus den Modellen, für alle Werte und aufgeteilt auf Tag- und Nachtbedingungen. . . . .	68
5.2	Korrelationskoeffizienten zwischen den Analysen der Wettervorhersagemodelle und den Radiosonden für verschiedene Variablen auf verschiedenen Druckleveln. . . . .	71
6.1	Zusammenfassung der Wetterlagen während aller Flüge und der maximalen Grenzschichthöhe (PGSH). Bodendruckkarten und weitere Informationen sind der meteorologischen Analyse in Kapitel 3 zu entnehmen. . . . .	74
6.2	Aufenthaltsregion der Partikel in den jeweiligen Höhenschichten, nach dem Freisetzen zwischen 1500 und 2500 m, über den gesamten Simulationszeitraum (72 Std.) oder den letzten 36 Std. bis zur Messung. . . . .	91
7.1	Mittlere Zusammensetzung der Luftmassen oberhalb und unterhalb von 2000 m über NN. . . . .	99

7.2	Zeitlich integrierte Aufenthaltszeit über 24 Stunden nach dem freisetzen der Partikel (R) (1000 - 2000 m) und (2000 - 3000 m). Dargestellt ist die relative Aufenthaltszeit in jeder Schicht im Vergleich zur Gesamtaufenthaltszeit in allen Schichten. . . . .	106
-----	-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	-----

# Anhang

## A Statistische Methoden

Die folgenden statistischen Methoden, die in dieser Arbeit verwendet wurden, gelten allgemein als Standard. Für eine vollständige Übersicht wird auf Schönwiese (2006) verwiesen:

### Arithmetisches Mittel:

Das arithmetische Mittel  $\bar{x}$  ist der Erwartungswert einer gleichverteilten Anzahl an Werten  $(x_1, \dots, x_n)$ :

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n x_i \quad (1)$$

### Standardabweichung:

Die Standardabweichung  $\sigma$  ist eine weitere Größe zur Bestimmung der Variation der Daten  $(x_1, \dots, x_n)$  von seinem Mittelwert und wird berechnet aus der Wurzel der Varianz:

$$\sigma = \sqrt{var} = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (2)$$

### Systematischer Fehler:

Zur Verifikation von Prognosen in numerischen Vorhersagemodellen wird im ersten Schritt häufig ein systematischer Fehler ( $\Delta$ , engl. BIAS) berechnet. Er ist definiert als Differenz zwischen dem Mittelwert der Analysen  $\mu$  und dem Mittelwert der Beobachtung  $\mu_0$ .

$$\Delta = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N (\mu(k) - \mu_0(k)) = \mu - \mu_0 \quad (3)$$

Diese Differenz des einzelnen Maßes von  $\Delta$  gibt einen Einblick in die Vorhersagequalität. Im Idealfall ist die Differenz null, bei positiver (negativer) Differenz überschätzt (unterschätzt) das Modell die Beobachtung. Über den Fehler in den einzelnen Bereichen der Analyse kann keine Aussage getroffen werden. Beispielhaft führen eine tendenziell unterschätzte niedrige Temperatur und eine überschätzte hohe Temperatur im Mittel zu einem geringen systematischen Fehler.

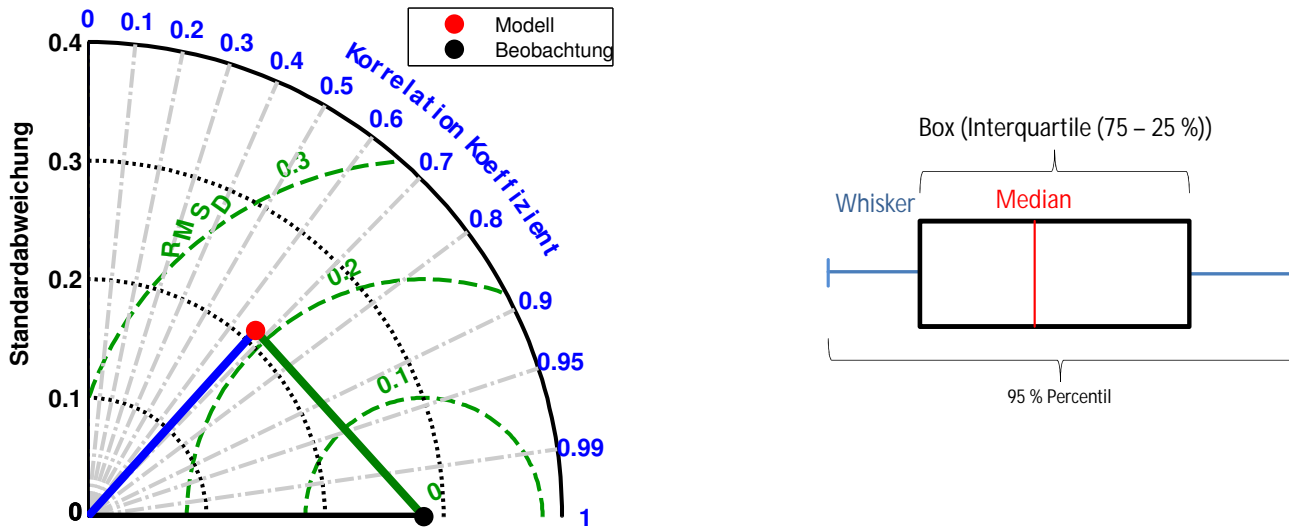
### Wurzel des zentrierten mittleren quadratischen Fehlers:

$$\Phi = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{k=1}^N ((\mu(k) - \bar{\mu}) - (\mu_0(k) - \bar{\mu}_0))^2} \quad (4)$$

Einen weiteren Aufschluss über die mittlere Übereinstimmung der Vorhersagen zu den Beobachtungen gibt die Wurzel des zentrierten mittleren quadratischen Fehlers (engl. Root Mean Square Error ( $\Phi$ )) an. Die besten Werte erreicht  $\Phi$ , wenn die Mittelwerte der Analysen und der Beobachtungen übereinstimmen. Durch das Quadrieren werden größere Abweichungen stärker gewichtet als kleinere, wodurch  $\Phi$  sensitiv auf Ausreißer reagiert. Vorteilhaft ist, dass  $\Phi$  die gleiche Einheit wie die zu evaluierende Variable hat. Die Zentrierung erfolgt über die Mittelwerte der Beobachtungen bzw. Analysen.

### Pearson – Korrelationskoeffizient:

Der Pearson Korrelationskoeffizient  $r$  gibt an, ob die Wertepaare der Beobachtung und der Analysen voneinander abhängig sind (unabhängig von der Variabilität zwischen den Beobachtungen und den Analysen). Der Wertebereich von  $r$  liegt zwischen -1 und +1. Ein Wert von  $r = 0$  bedeutet keine lineare Abhängigkeit, eine vollkommene lineare Abhängigkeit gilt für  $r = 1$  bzw.  $r = -1$ . Das Vorzeichen



**Abb. 2:** Links: Schema eines Taylordiagramms. Die Beobachtung (schwarzer Punkt) wird gegen die Analyse (roter Punkt) untersucht. Die Standardabweichung der Beobachtung (schwarze Linie) und des Modells (blaue Linie) ist dargestellt. In der Verlängerung der blauen Linie ist der Korrelationskoeffizient aufgetragen, der durch den Arkussinus aufgespannt wird.  $\Phi$  ist durch die grüne Linie dargestellt. b) Schema eines Box-Whisker-Plot mit verschiedenen Kennwerten.

bezeichnet dabei, ob die Wertepaare positiv (bzw. negativ) korreliert sind.

$$r = \frac{\sum_{k=1}^N (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{k=1}^N (x_i - \bar{x})^2} \sqrt{\sum_{k=1}^N (y_i - \bar{y})^2}} \quad (5)$$

mit den Mittelwerten  $\bar{x}, \bar{y}$  der Daten und  $N$  die Größe des Datensatzes.

### Spearman – Rangkorrelationskoeffizient:

Eine Alternative Methode um den Korrelationskoeffizienten zu bestimmen ist der Spearman-Rangkorrelationskoeffizient. Diese Methode ist auch für Daten geeignet, wenn sie keiner Normalverteilung folgen. Allerdings muss ein monotoner Zusammenhang bestehen. Dazu werden sie zuerst dem Rank nach geordnet und dann wird der Korrelationskoeffizient bestimmt mit:

$$r = 1 - \frac{6 \cdot \sum_{k=1}^N D_i^2}{N^3 - N} \quad (6)$$

wobei  $D_i$  die Rankdifferenzen sind. Der Wertebereich von  $r$  liegt zwischen -1 und +1.

### Taylordiagramm:

Taylor (2005) erkannte die Möglichkeit in einem Diagramm die Größen  $\Phi$ ,  $r$  und  $\sigma$  aus den Mittelwerten zwischen Beobachtungen und Analysen darzustellen. Die Standardabweichung zwischen den Modellanalysen und der Beobachtung ist durch die Differenz zum Nullpunkt gegeben, der Beobachtungswert liegt dabei als Fixpunkt auf der Abszisse. Radial wird der Korrelationskoeffizient zwischen Beobachtung und Analyse abgelesen und spannt eine zweite Gerade auf. Der Arkussinus zwischen dem Fixpunkt und dem Endpunkt der zweiten Gerade gleicht dem  $\Phi$  zwischen der Beobachtung und der Analyse (Abb. 2).

### Box-Whisker-Plot

Der Box-Whisker-Plot ist eine grafische Darstellung, mit der ein guter Überblick über eine Verteilung von Daten einer Stichprobe verschafft werden kann (Abb. 2). Diese besteht immer aus einem Rechteck (Box) und zwei Linien (Whisker), die dieses Rechteck verlängern. Die Box entspricht dem Bereich, in dem die mittleren 50% der Daten liegen. Sie wird also durch das obere und das untere Quartil begrenzt, und die

Länge der Box entspricht dem Interquartilsabstand. Dieser ist ein Maß der Streuung der Daten, welches durch die Differenz des oberen und unteren Quartils bestimmt wird. Der Median wird als durchgehender Strich in die Box eingezeichnet. Dieser teilt das gesamte Diagramm in zwei Hälften, in denen jeweils 50% der oberen und der unteren Werte liegen. Durch seine Lage innerhalb der Box bekommt man also einen Eindruck von der Schiefe der den Daten zugrunde liegenden Verteilung. Befindet sich der Median im linken Teil der Box, so ist die Verteilung rechtsschief und umgekehrt. Im Gegensatz zur Definition der Box ist die genaue Definition der Whiskers nicht immer einheitlich. Die Berechnung des unteren Whisker erfolgt aus dem unteren 2.5%-Quantil und die Berechnung des oberen als 97.5%-Quantil. Innerhalb der Whiskergrenzen liegen somit 95% aller beobachteten Werte. Alle Datenpunkte außerhalb der Whisker werden als Ausreißer bezeichnet.

## B FLEXPART-COSMO-EU

Im Folgenden wird kurz zusammengefasst, welche Änderungen vorgenommen werden mussten, um die FLEXPART-COSMO (Version 4731) mit meteorologischen Feldern von COSMO-EU oder COSMO-DE betreiben zu können. Eine detaillierte Beschreibung von FLEXPART ist in Stohl et al. (2005) und umfangreiche Umformung für FLEXPART-COSMO in Brunner (2011) zu finden.

Zur Berechnung des Absolutdrucks und die Höhen der Modellschichten wurden in den Fortran-Routinen *readwind.f90*, *read\_accumulated\_field.f90*, *gridcheck.f90* und *grid\_check\_laf.f90* kleine Änderungen eingefügt. Des Weiteren liegen in den GRIB-Files einige Variablen doppelt vor und resultieren noch aus ehemaligen Nudging verfahren (pers. Korrespondenz, DWD). Diese sind zu erkennen am Eintrag `subCentre = 0` und werden in *readwind.f90* gefiltert.

Die Daten von COSMO-EU und COSMO-DE können über das Online-Portal Pamore beim Deutschen Wetterdienst erworben werden. Die Daten müssen anschließend auf einheitliche Werte (`uvrealtivetogrid = 1`) prozessiert werden. `grib_copy -w uvRelativeToGrid=1 in.grib out.grib`.

An dieser Stelle möchte ich mich ausdrücklich bei XXXXXXXXXX vom Eidgenössische Materialprüfungs- und Forschungsanstalt (EMPA) für die Bereitstellung der FLEXPART-COSMO-Version, den notwendigen Modifikationen und der tatkräftigen Unterstützung bedanken.

## C Flugzeuggetragene Messinstrumente

### FABLE

Das Messprinzip zur Messung von CO<sub>2</sub> mit dem baugleichen kommerziellen Messgerät LICOR-6262 wurde bereits in Kapitel 2 vorgestellt. Weitere umfassende Umbauten zur Stabilisierung von Druck und Temperatur zur Messung im Flugzeug und technische Details zum Messgerät können aus der Diplomarbeit von Gurk (2003) und Gurk et al. (2008) entnommen werden. Des Weiteren ist eine Zweipunktkalibrierung des Gerätes nicht mehr notwendig, da der Gang des Gerätes sowohl die Referenz als auch die Sensitivität gleichermaßen betrifft. Die Gesamtunsicherheit von CO<sub>2</sub> lag für diese Messkampagne bei 0.54 ppmv (Krause, 2014).

### QUALITAS

Das Quantenkaskadenlaser-Spektrometer QUALITAS ist eine Entwicklung des Max-Planck-Instituts für Chemie in Mainz und wird für die Messung von Kohlenmonoxid (CO) eingesetzt (Kormann et al., 2005). Zur Messung von niedrigen Mischungsverhältnissen im ppb-Bereich werden hier in der Spektroskopie eine sogenannte Herriot-Zellen verwendet. Durch die Multireflexion der Spiegel wird der Laserstrahl bei einem geregelten Druck von 50 mbar in der Zelle 91-mal reflektiert. Das Mischungsverhältnis von CO wird mittels der 2f-Spektroskopie bestimmt. Dabei wird die zweite Ableitung des Rohsignals verwendet, um eine rauscharme Absorptionslinie zu erhalten. Mit In-situ-Kalibrationen kann mit dem Instrument eine Gesamtunsicherheit von 2 % bei atmosphärischen Mischungsverhältnissen (bei CO = 100 ppbv) erreicht werden.

### O342M

Das Mischungsverhältnis von Ozon wird mit dem Gasanalysator O342M von Environnement S.A. ([www.environnement-sa.com](http://www.environnement-sa.com)) während der Flugzeugmessungen bestimmt. Die Detektion von Ozon basiert auf der Absorption im UV-Bereich. Die Messluft wird vor dem Einlass mit einem Partikelfilter von Störkörpern befreit und mit einer internen Pumpe zur Messzelle im Gasanalysator weitergeleitet. In der Messzelle wird die Messluft mit UV-Licht (253.7 nm) bestrahlt und die Intensitätsabnahme durch Strahlungsabsorption durch die Ozonmoleküle gemessen. Anschließend wird zur Messung der Intensitätsabnahme ohne die Ozonabsorption die Messluft mit Mangandioxid von allen Ozonmolekülen befreit und noch einmal mit UV-Licht bestrahlt. Aus der Differenz der Intensität zwischen den beiden Messzyklen wird das Ozonmischungsverhältnis bestimmt.

Jeder Messzyklus dauert ca. 5 Sekunden, sodass eine Zeitauflösung von maximal 10 Sekunden vorliegt. Folgende Spezifikationen sind zusammengefasst aus der Diplomarbeit von Köllner (2013) entnommen. Da die Kalibrierung des Messgerätes mit trockener Luft durchgeführt wird, ist eine Korrektur von feuchten Luftmassen nur in positiver Richtung notwendig. Ab einer Feuchte von  $10 \text{ gkg}^{-1}$  ist mit einer Gesamtunsicherheit von 10 % des Ozonmischungsverhältnisses zu rechnen, ansonsten 1.3 ppbv.

### Partikelanzahlkonzentration

Die Partikelanzahlkonzentration (N) wurde mit zwei verschiedenen Instrumenten an zwei verschiedenen Einlässen (Impaktoren) bestimmt.

### OPC

Das Aerosolspektrometer (Optische Partikelzähler SKY-(OPC), [www.grimm-aerosol.com](http://www.grimm-aerosol.com)) misst Partikelanzahlkonzentrationen von 1 bis 2 Millionen Partikel pro Liter in den Größenbereichen von  $2.5 \text{ nm}$  bis  $32 \mu\text{m}$  in 31 Kanälen. Das Messprinzip basiert auf der Streuung von Licht an Partikeln. Durch sie wird die optische Partikelgröße über die Intensität des am Probeaerosol gestreuten Lichts einer Laserdiode mittels Mie-Rechnung bestimmt, d.h., es werden sphärische, homogene Partikel angenommen. Das Streusignal wird in einem Impulshöhen-Vielkanalzähler analysiert, die Zuordnung der Partikelgröße erfolgt über eine Kalibrierung mit Testaerosol. In dieser Arbeit wurden alle Kanäle ab einer Größe von  $2.5 \mu\text{m}$  zusammengefasst, da die maximale Partikelanzahlkonzentration bei  $200 \text{ \#/L lag}$  ( $0.2 \text{ \#/ccm}^{-3}$ ). Zum Vergleich: Im ersten Kanal (0.25 - 0.28) wurde die höchste Partikelanzahlkonzentration bei  $123000 \text{ \#/L}$  bestimmt. Die Genauigkeit wird mit 10 % angegeben.

### CPC

Eine modifizierter Kondensationskernzähler UAV-(CPC) wird zur Bestimmung der Partikelanzahlkonzentration in der Troposphäre verwendet und basiert auf dem kommerziellen CPC-Modell 3007 von TSI ([www.tsi.com](http://www.tsi.com)). Die Messluft wird durch übersättigten Isopropanoldampf geleitet, der auf den Partikel kondensiert und sie auf Größen anwachsen lässt, bei denen sie optisch gezählt werden können. Laut Hersteller können so Partikel ab einem Partikeldurchmesser von 10 nm erfasst werden. Die Genauigkeit wird mit 10 % zu der bestimmten Partikelanzahlkonzentration beziffert.

### Weitere Größen

Zur Messungen der Lufttemperatur und der relativen Feuchte wird das VAISALA-Sensor HMP230 und zur Absolutdruckmessung ein SETRA Model 270 verwendet. Die Genauigkeit der Temperaturmessungen beträgt laut Gerätehersteller  $\pm 0.5 \text{ }^\circ\text{C}$ , der Feuchtemessung bei  $\pm 2 \%$  im Bereich 0 - 90 % und der Druckmessung bei  $\pm 0.05 \%$  (ca.  $0.55 \text{ hPa}$ ). Bei der Temperaturmessung sind höheren Abweichungen bei dieser Messkampagne aufgetreten, denn es wurde ein neuer Einbauort für den Temperatursensor am Flugzeug verwendet. Der Korrekturfaktor zur Kompensation des Temperaturaufschlages durch die Umwandlung von kinetischer- in Wärmeenergie ist aber vom Einbauort am Flugzeug abhängig und bei dieser Kampagne evtl. nicht korrekt einkalibriert worden. Deshalb kann der Fehler bei der Temperatur- und Feuchtemessung auch höher ausfallen (Tab. 2.1).

### Geräte-Spezifikationen

Es sollte beachtet werden, dass diese Gerätespezifikationen nicht auf andere Instrumente und Messdurchführung ohne weiteres übertragbar sind. Diese Fehlermaße sind zur Charakterisierung des LICOR Messgeräts angenommen worden:

### Ansprechzeit

Die Ansprechzeit ist definiert als die Anstiegszeit, die das Messsignal benötigt, um sich bei einer sprunghaften Änderung des Mischungsverhältnisses von 5 auf 95 Prozent des neuen Wertes anzupassen und einer gewissen Totzeit, die z.B. durch Leitungslängen entstehen kann.

### Präzision

Die Präzision des Messsignals entsteht durch verschiedene Quellen im Analysator. Dabei handelt es sich um statistische unabhängige Fluktuationen (Rauschen) und unbekannte Störungen um einen Mittelwert in sehr kurzen Zeitabständen. Statistische Fehler sind bedingt durch nicht beeinflussbare Änderungen auf die Messung, unabhängig vom Messgerät oder der Messgröße. Die Präzision wird experimentell bestimmt, über einen kurzen Abschnitt mit konstantem Mischungsverhältnis. Als Maß für die Präzision wird der Fehler der Einzelmessung bestimmt.

$$\sigma_x = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{(n-1)}} \quad (7)$$

mit  $\sigma_x$  = Fehler der Einzelmessung,  $x_i$  = Einzelmesswert,  $\bar{x}$  = Mittelwert der Einzelmessungen,  $n$  = Anzahl der Einzelwerte

### Genauigkeit

Viele Messgeräte weisen langsame Änderungen der Signals auf (Gang). Ursachen können z.B. Änderungen der Umgebungsbedingungen wie Temperatur, Druck und Feuchte sein oder eine Kombinationen mehrerer teilweise unbekannter Faktoren. Neben der Präzision enthält diese Größe auch andere Fehlerquellen, z.B. systematische Fehler wie ein Offset in der Temperatur- oder Druckmessung. Die Genauigkeit wird berechnet aus Abweichung von aufeinander folgenden Kalibrationen:

$$\overline{\Delta_{Drift}} = \frac{\sum_{i=1}^{n-1} |c_{i+1} - c_i|}{(n-1)} \quad (8)$$

mit  $c_i$  = Mittelwert der Kalibration,  $n$  = Anzahl der Kalibrationen.

### Gesamtunsicherheit

Während die Präzision und die Genauigkeit reine Gerätegrößen sind, ist die Gesamtunsicherheit zusätzlich von der Messmethodik abhängig. Durch die Verwendung von Kalibrationsgasen für die relative Messung ist der Messwert auch von dem Fehler des verwendeten Kalibrationsstandards abhängig. Bezogen auf das LICOR-6262 wird die Gesamtunsicherheit bestimmt, aus der Unsicherheit des verwendeten Laborstandards (LS), der Präzision und der Genauigkeit des Messinstrumentes. Die Gesamtunsicherheit des Messgerätes berechnet sich demnach wie folgt:

$$\text{Gesamtunsicherheit} = \sqrt{\sigma_x^2 + \Delta_{Drift}^2 + LS^2}$$

Diese gibt letztendlich eine obere Abschätzung des Fehlers für die Messwerte der Messungen an.

## D Grenzsichthöhenbestimmung mit dem Ceilometer

Während der Messkampagne wurde erstmals ein Ceilometer auf dem Kleinen Feldberg installiert, um die Aerosolschichthöhe als weitere Messgröße zur Grenzsichthöhenbestimmung nutzen zu können. Alle 30 Sekunden wird dazu ein Vertikalprofil durch Laserpulse erhoben. Sehr gute Ergebnis liefert ein Ceilometer bei sehr trockenen ( $\leq 62\%$ ) Hochdruckwetterlagen Munkel et al. (2007). Diese Bedingungen waren allerdings nur zu 24.5% während der Messkampagne vorhanden. Insgesamt sind durch die komplexe Wetterlage (Nebel und Niederschlag) nur 81% der Daten über die gesamte Kampagne verfügbar. Die Bestimmung der Grenzsichthöhe aus den Rückstreuprofilen kann mit verschiedenen Methoden

abgeschätzt werden, allerdings können auch diese, wie bei den meteorologischen Variablen, zu unterschiedlichen Ergebnissen führen. In dieser Arbeit wird die Grenzschichthöhe mit der Mittelwertmethode bestimmt (Wendling, 2012). Diese Methode basiert auf der schrittweisen Mittlung des Vertikalprofils (Schneider and Eixmann, 2002). Sobald der Mittelwert um die Hälfte des maximalen Mittelwertes gefallen ist, wird diese Höhe als Grenzschichthöhe festgelegt. Diese Methode wird von den Autoren zur Bestimmung der Höhe der Residualschicht empfohlen. Diese berechneten Grenzschichthöhen werden auf Stundenwerte gemittelt, sodass zu jeder vollen Stunde ein Wert zur Verfügung steht und kann dann mit den Grenzschichthöhen aus den Radiosondenmessungen und den Modellergebnissen verglichen werden können.



# Danksagung

Aus datenrechtlichen Gründen in der Onlineversion entfernt.

# Lebenslauf

Aus datenrechtlichen Gründen in der Onlineversion entfernt.