

# **SPURENGASTRANSPORT AUS DEM INDISCHEN SOMMERMONSUN**

**Dissertation**

**zur Erlangung des Grades**

**„Doktor der Naturwissenschaften“**

**am Fachbereich Physik, Mathematik, Informatik**

**der Johannes Gutenberg-Universität**

**in Mainz**

**Laura Tomsche**

**geb. in Würzburg**

**Mainz, den 24. Januar 2018**

Mündliche Prüfung:  
07. Mai 2018



## Zusammenfassung

Die asiatische Monsun Antizyklone (AMA) ist ein jährlich erscheinendes Phänomen in der oberen Troposphäre. Sie spielt eine zentrale Rolle für die chemische Zusammensetzung der oberen Troposphäre während des indischen Sommermonsuns. Über starke Konvektion ist sie mit der unteren Troposphäre verbunden, wodurch Luftmassen aus bodennahen, verschmutzten Schichten in die AMA transportiert werden. In der oberen Troposphäre wirkt sich die AMA auf die globale Zirkulation und die Spurengasverteilung aus. Ihre Zirkulation erstreckt sich über einen Bereich von ca.  $20 - 120^\circ \text{E}$  und  $15 - 40^\circ \text{N}$ . Die Transportwege in die AMA, als auch ihre horizontale Verteilung sind noch nicht vollständig verstanden, aber durch die Zunahme von Emissionen im südasiatischen Raum ist es wichtig die Prozesse im Zusammenhang mit der AMA, wie die Dynamik, die Spurengasverteilung und die lokalen und globalen Auswirkungen der AMA, besser zu verstehen. Für diesen Zweck wurde im Juli und August 2015 die Flugzeugmesskampagne OMO (Oxidation Mechanism Observations) mit dem deutschen Forschungsflugzeug HALO (High Altitude and Long Range Research Aircraft) in der oberen Troposphäre über dem Mittelmeer, der Arabischen Halbinsel und dem Arabischen Meer durchgeführt. Der Schwerpunkt dieser Arbeit ist der Langstreckentransport von Spurengasen und die Dynamik der AMA. Dafür wurden die Spurengase Methan ( $\text{CH}_4$ ) und Kohlenstoffmonoxid ( $\text{CO}$ ) mit dem IR-Laserabsorptionspektrometer TRISTAR gemessen. Für eine umfassendere Analyse wurden noch Modelldaten aus dem globalen atmosphären-chemischen Zirkulationsmodell EMAC, sowie Rückwärtstrajektorien aus dem Lagrange'schen Dispersionsmodell FLEXPART und Satellitendaten hinzugezogen.

Mit Hilfe von Hintergrundprofilen wurde ein  $\text{CH}_4$ -Schwellwert ermittelt, wodurch eine Unterteilung zwischen AMA-Einfluss und Hintergrund vorgenommen werden konnte. Die beiden Spurengase zeigten einen Anstieg in den Mischungsverhältnissen, wenn sie von der AMA beeinflusst wurden. Wobei die in situ-Mischungsverhältnisse von  $\text{CH}_4$  um 72.1 ppb und von  $\text{CO}$  um 20.1 ppb anstiegen. EMAC simulierte Zunahmen von 24.0 ppb für  $\text{CH}_4$  und 14.7 ppb für  $\text{CO}$ . Dank der Lebensdauern von einigen Monaten bis hin zu einigen Jahren der beiden Spurengase, sind sie gut geeignet, um den Langstreckentransport zu identifizieren, vor allem  $\text{CH}_4$ , da es zusätzlich noch eine geringe Hintergrundvariabilität aufweist. Ihren Ursprung haben die verschmutzten Luftmassen vor allem in einem Bereich zwischen Indo-Ganges-Ebene, Bangladesch und Nordostindien. Dennoch konnte auch der vertikale Transport von Luftmassen außerhalb der Hauptkonvektionsgebiete beobachtet werden. Dies eröffnet die Option, dass erhöhte Spurengasmischungsverhältnisse auch außerhalb der AMA in die obere Troposphäre eingetragen werden können und so die chemische Zusammensetzung der oberen Troposphäre beeinflussen.

Die meteorologische Situation konnte in Bezug auf die Lage der AMA in vier Moden unterteilt werden. Am Anfang und am Ende von OMO war jeweils eine 2-Antizyklone-Situation, wobei die westliche Antizyklone über dem östlichen Mittelmeer lag und von HALO beprobt wurde. Dazwischen gab es eine Antizyklone, welcher die Position eines zentralen Modos und eines tibetischen Modos annahm.

Durch die Dynamik der AMA und den damit einhergehenden Instabilitäten in der Zirkulation können Luftmassen bevorzugt am westlichen bzw. östlichen AMA-Rand aus der Antizyklone ausströmen. Während OMO wurde dies auf Grund der Flugrouten am westlichen AMA-Rand beobachtet.

Mittels der 2-Antizyklone-Situationen konnte die chemische Isolation anhand der *CO*-Oxidation in der westlichen Antizyklone nachgewiesen werden. Außerdem zeigte sich in den *CH*<sub>4</sub>-Mischungsverhältnissen eine Zunahme über den gesamten Zeitraum der Messkampagne, was auf eine Zunahme der Konvektion bzw. der Emissionen zurückzuführen ist.

## Summary

The Asian Monsoon Anticyclone (AMA) is a yearly recurring phenomenon in the upper troposphere where it plays an important role in the chemical composition during the Indian summer monsoon. Due to strong convection polluted surface layer air masses are transported into the AMA. In the upper troposphere the AMA influences the global circulation and the distribution of trace gases. Its circulation extends approximately over the range of 20 – 120° E and 15 – 40° N. The transport pathways as well as the dynamics of the AMA are not yet fully understood, but due to an increase in emissions in Southeast Asia it is important to improve our understanding of the AMA. Therefore we need to investigate the dynamics, the trace gas distribution and also the local and global influence of the AMA. For this purpose the aircraft campaign OMO (Oxidation Mechanism Observations) with the German research aircraft HALO (High Altitude and Long Range Research Aircraft) was performed in the upper troposphere over the Mediterranean, the Arabian Peninsula and the Arabian Sea. The focus of this work is on the long range transport of trace gases and the dynamics of the AMA. Hence we measured the trace gases methane (*CH*<sub>4</sub>) and carbon monoxide (*CO*) with the IR laser absorption spectrometer TRISTAR. For a more detailed analysis we also used simulations with the atmospheric-chemistry global circulation model EMAC and back trajectories from the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART as well as satellite data.

From background profiles we calculated a *CH*<sub>4</sub>-threshold to distinguish between

---

background and AMA influence. The in situ mixing ratios for  $CH_4$  and  $CO$  increased during AMA influence by about 72.1 ppb and 20.1 ppb, respectively. EMAC simulated an increase of about 24.0 ppb for  $CH_4$  and 14.7 ppb for  $CO$ . With a lifetime of month to years  $CH_4$  and  $CO$  are appropriate tracers to identify long range transport. Especially  $CH_4$  with its narrow background variability is very useful. The polluted air masses have their origin in the region between the Indo-Gangetic plain, Bangladesh and Northeast India. Besides these main convection areas, uplifting of polluted air masses took also place in other regions. Thus the chemical composition of the upper troposphere can also be influenced outside the AMA.

The meteorological situation during OMO can be distinguished into four modes with respect to the position of the AMA: twice a 2-anticyclone mode, with the western anticyclone over the Eastern Mediterranean, which HALO flew through, a central mode and a Tibetan mode. Due to the dynamics of the AMA, which causes instabilities in the circulation, air masses can leave the AMA with a preference on the eastern and western flanks of the AMA, respectively. During OMO the outflow of air masses was observed at the western flank of the AMA due to the flight routes west of the AMA. In the 2-anticyclone modes the chemical isolation of the AMA was determined by the  $CO$  oxidation in the western anticyclone. Furthermore the  $CH_4$  mixing ratios increased during the campaign, which indicates a strengthening of the convection or an increase in the emissions or both.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Die Asiatische Monsun Antizyklone</b>	<b>12</b>
1.1. Entstehung und Dynamik der Antizyklone . . . . .	12
1.2. Rolle von Kohlenmonoxid und Methan in der oberen Troposphäre . .	17
<b>2. Methoden</b>	<b>22</b>
2.1. Messinstrument TRISTAR . . . . .	22
2.1.1. Messprinzip . . . . .	22
2.1.2. Aufbau TRISTAR . . . . .	23
2.1.3. Modifikationen für OMO . . . . .	25
2.1.4. Datenaufzeichnung und -auswertung . . . . .	26
2.1.5. Qualität der Messung von $CO$ , $CH_4$ und $HCHO$ . . . . .	27
2.2. EMAC-Modell . . . . .	29
2.2.1. Daten entlang der Flugrouten . . . . .	30
2.2.2. 3D-Daten für Spurengase und Meteorologie . . . . .	30
2.3. Trajektorienmodell FLEXPART . . . . .	31
2.3.1. Grundlage . . . . .	31
2.3.2. Eingangsdaten und Einstellungen . . . . .	32
2.3.3. Datenausgabe . . . . .	33
2.4. Satellitendaten . . . . .	33
<b>3. Messkampagne OMO</b>	<b>35</b>
<b>4. Ergebnisse</b>	<b>37</b>
4.1. Datenanalyse für Flug 19 . . . . .	37
4.1.1. In situ-Messungen von $CO$ und $CH_4$ . . . . .	37
4.1.2. Vergleich von Spurengasen entlang der Flugroute . . . . .	38
4.1.3. Herkunft der Luftmassen . . . . .	39
4.1.4. Konvektion im Monsun . . . . .	40
4.1.5. Emissionsquellen . . . . .	41
4.2. Profile und Methanschwellwert . . . . .	43
4.3. AMA während OMO . . . . .	48
4.3.1. 3D-Verteilung der Spurengasen $CO$ und $CH_4$ . . . . .	48
4.3.2. AMA-Unterscheidung in Modell- und in situ-Daten . . . . .	51

---

4.3.3.	3D-Betrachtung der AMA . . . . .	53
4.3.4.	Globale Ausdehnung der AMA . . . . .	57
4.4.	Lage der AMA . . . . .	58
4.4.1.	Einteilung in vier Moden . . . . .	58
4.4.2.	Vier Moden im $CH_4$ . . . . .	60
4.4.3.	Abschätzen der chemischen Isolation . . . . .	65
4.5.	Hohe $CH_4$ -Mischungsverhältnisse außerhalb der AMA . . . . .	69
4.5.1.	Ausströmen einer Luftmasse aus der AMA am südwestlichen Rand . . . . .	70
4.5.2.	Lagrange'scher Luftmassentransport . . . . .	73
4.5.3.	Konvektion südlich der AMA . . . . .	77
4.6.	Fallstudien . . . . .	82
4.6.1.	Konvektionsgebiet am westlichen AMA-Rand . . . . .	82
4.6.2.	Südhemisphäreneinfluss . . . . .	85
<b>5.</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>88</b>
<b>A.</b>	<b>Anhang</b>	<b>93</b>
A.1.	Messinstrumente bei OMO . . . . .	93
A.2.	Abkürzungsverzeichnis . . . . .	94
A.2.1.	chemische Komponenten . . . . .	94
A.2.2.	sonstige Abkürzungen . . . . .	94
A.3.	FLEXPART: Quellcode und Einstellungen . . . . .	96
A.4.	Übersicht Flüge . . . . .	99
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>122</b>



# Abbildungsverzeichnis

1.1. Schema der Zirkulation des indischen Sommermonsuns und Lage der ITCZ . . . . .	13
1.2. Schema des indischen Sommermonsuns mit Transportwegen . . . . .	15
2.1. TRISTAR in HALO . . . . .	22
2.2. TRISTAR Schema . . . . .	24
2.3. TRISTAR Gaslaufplan . . . . .	25
3.1. OMO Flugrouten . . . . .	35
4.1. Flug 19: In situ $CH_4$ und $CO$ entlang der Flugroute . . . . .	38
4.2. Flug 19: In situ und EMAC-SD4 für $CH_4$ und $CO$ . . . . .	38
4.3. Flug 19: 10 Tage-Rückwärtstrajektorien. . . . .	39
4.4. Flug 19: Wolkenobergrenzen . . . . .	40
4.5. Flug 19: Emissionquellen . . . . .	41
4.6. gemittelte in situ- und EMAC-Profile für $CO$ und $CH_4$ . . . . .	44
4.7. In situ- $CH_4$ -Histogramm für Hintergrund, AMA und Südhemisphäre . . . . .	47
4.8. Flug 19: In situ und EMAC-SD4 für $CH_4$ und $CO$ . . . . .	47
4.9. Rückwärtstrajektorien mit $CH_4$ -Mischungsverhältnissen . . . . .	49
4.10. Rückwärtstrajektorien mit $CO$ -Mischungsverhältnissen . . . . .	50
4.11. Histogramme: Differenz zwischen in situ- und EMAC-SD4-Daten für $CH_4$ und $CO$ . . . . .	51
4.12. Histogramme für AMA und Hintergrund . . . . .	53
4.13. Flug 19: EMAC-Horizontalschnitte. . . . .	55
4.14. Flug 19: EMAC-Vertikalschnitte. . . . .	56
4.15. EMAC-Vertikalschnitte über Quellregion. . . . .	57
4.16. Globale Ausdehnung der AMA während OMO . . . . .	58
4.17. Vier Positionen der AMA während OMO . . . . .	59
4.18. Aufenthaltsdauer in der westlichen AMA . . . . .	69
4.19. Flug 11: $CH_4$ -Verteilung und Rückwärtstrajektorien. . . . .	71
4.20. Flug 11: Vertikalprofile für $CH_4$ und Wolkenobergrenze. . . . .	72
4.21. Lagrange'scher Transport während des Zentralen Modes (1). . . . .	74
4.22. Lagrange'scher Transport während des Zentralen Modes (2). . . . .	76

---

4.23. Flug 20: Konvektion außerhalb der AMA (1) . . . . .	78
4.24. Flug 20: Konvektion außerhalb des AMAs (2) . . . . .	80
4.25. Flug 11: Konvektionsgebiet über Nordwestindien. . . . .	83
4.26. Flug 11: Rückwärtstrajektorien mit Ursprung über Nordwestindien. . . . .	84
4.27. Flug 11: Rückwärtstrajektorien mit Verlauf über Zentralindien in der unteren Troposphäre. . . . .	85
4.28. Flug 11: EMAC-Vertikalprofile für $CH_4$ vom 24.07.2015. . . . .	86
A.1. Flug 08 . . . . .	100
A.2. Flug 09 . . . . .	101
A.3. Flug 10 . . . . .	102
A.4. Flug 11 . . . . .	103
A.5. Flug 12/13 . . . . .	104
A.6. Flug 14 . . . . .	105
A.7. Flug 15/16 . . . . .	106
A.8. Flug 17/18 . . . . .	107
A.9. Flug 19 . . . . .	108
A.10. Flug 20 . . . . .	109
A.11. Flug 21 . . . . .	110
A.12. Flug 22 . . . . .	111
A.13. Flug 23 . . . . .	112
A.14. Flug 24 . . . . .	113

# Tabellenverzeichnis

3.1. Übersicht über die wissenschaftlichen Flüge während OMO. . . . .	36
4.1. Mittelwerte und Standardabweichung für $CH_4$ und $CO$ für Hintergrund und AMA, jeweils in situ- und EMAC-Daten. . . . .	52
4.2. Vier verschiedene Moden der AMA während OMO: 1) 2-Antizyklone, 2) zentraler Mode, 3) tibetischer Mode und 4) 2-Antizyklone. . . . .	61
A.1. Übersicht der Messinstrumente bei OMO. . . . .	93

# Listings

A.1. COMMAND-Datei für Flug 11 (01.08.2015) . . . . .	96
A.2. RELEASES-Datei für Flug 11 (01.08.2015) mit zwei release points .	98

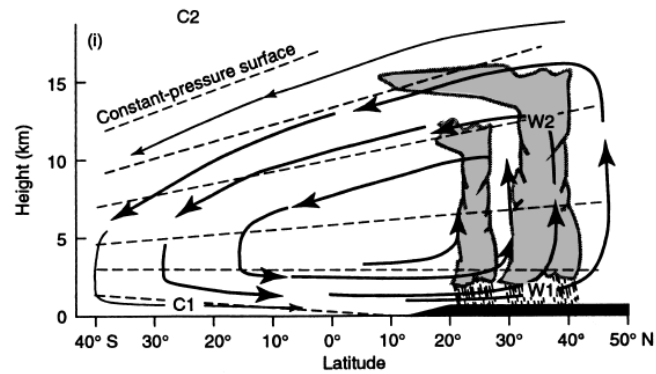
# 1. Die Asiatische Monsun Antizyklone

In dieser Arbeit wird der Langstreckentransport der Spurengase Methan ( $CH_4$ ) und Kohlenstoffmonoxid ( $CO$ ) in der oberen Troposphäre im Zusammenhang mit der asiatischen Monsun Antizyklone anhand von flugzeuggetragenen in situ-Messungen, Modelldaten und Rückwärtstrajektorien untersucht. Daher werden im Folgenden die Entstehung der Antizyklone und ihrer Dynamik, sowie die Rolle von Spurengasen in der oberen Troposphäre erläutert.

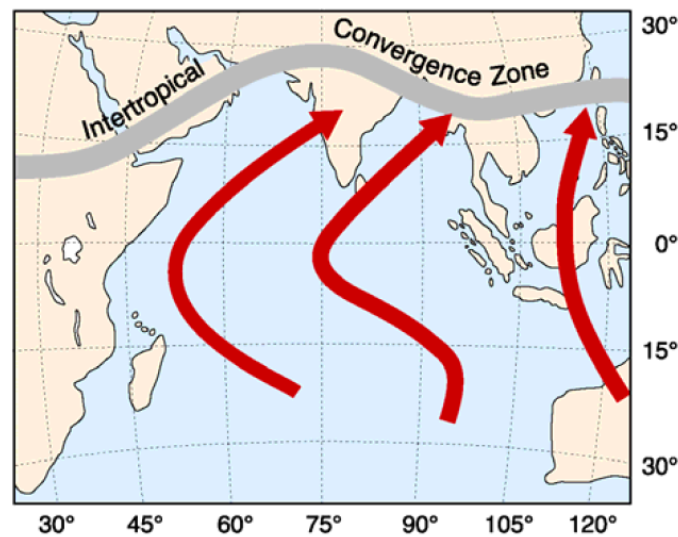
## 1.1. Entstehung und Dynamik der Antizyklone

Das Wort Monsun stammt ursprünglich aus dem Arabischen und bedeutet soviel wie Jahreszeit. Mit diesem Begriff werden Winde bezeichnet, die ihre Hauptwindrichtung im Verlauf des Jahres stark ändern. Die drei wichtigsten Gebiete für Monsune sind Indien, Westafrika, sowie Südost- und Ostasien. Außerdem gibt es eine weitere Monsunzirkulation in Nordamerika (Dash (2005)). Die stärkste Monsunzirkulation ist in Asien und bestimmt das Klima des indischen Subkontinents. Am Boden zeichnet sich der indische Monsun durch Nordostwinde und eine Trockenzeit im Winter, sowie durch Südwestwinde und starke Regenfälle im Sommer aus (Kraus (2007)). Des Weiteren bildet sich im Sommer in der oberen Troposphäre eine Antizyklone aus, welche in der Literatur verschiedene Namen hat, wie Asiatische Sommer Monsun Antizyklone (ASMA, z.B. Gottschaldt et al. (2017)), SüdAsiatisches Hoch (SAH, z.B. Nützel et al. (2016)) oder Asiatische Monsun Antizyklone (AMA, z.B. Barret et al. (2016)). Diese Arbeit behandelt den indischen Sommermonsun mit dem Fokus auf der Asiatischen Monsun Antizyklone. Daher wird dieses meteorologische Phänomen hier näher erläutert.

Der Sommermonsun entsteht durch die differentielle Erwärmung zwischen Kontinent und Ozean. Der asiatische Kontinent liegt dabei im Norden und der Indische Ozean im Süden. Durch die Absorption von solarer Strahlung erwärmt sich die Oberfläche



(a)



(b)

Abbildung 1.1.: (a) Schematische Darstellung der Zirkulation im indischen Sommermonsun nach Holton and Hakim (2004). Die gestrichelten Linien zeigen die Isobaren und die Pfeile stellen die meridionale Zirkulation dar. (b) Lage der ITCZ im Sommer über Asien; die roten Pfeile stellen den bodennahen Wind dar, welcher von einem Südostpassat nach dem Überströmen des Äquators in einen Südwestpassat übergeht (Lawrence and Lelieveld (2010)).

des Kontinents schneller als die obere Schicht des Ozeans, da die Erde eine geringere Wärmekapazität hat als das Meer. Dies wird durch die große Landmasse von Asien mit ihrer weiten Ost-West-Erstreckung und dem Himalaya begünstigt (Dash (2005)). Dies führt dazu, dass eine Schicht zwischen zwei Druckleveln (z.B. 1000–200 hPa) eine größere Mächtigkeit über Land hat als über dem Meer (Abbildung 1.1(a), Holton and Hakim (2004)). Daraus ergibt sich ein Druckgradient in der Höhe vom Land hin zum Meer. Dieser Druckgradient erzeugt einen divergenten Wind in der Höhe und damit einen Nettomassenfluss vom Kontinent zum Ozean hin, welcher an der Oberfläche über dem Land zu geringem Druck führt. Um dies auszugleichen entsteht ein konvergenter Wind in der bodennahen Schicht. Dieser weht vom Meer her und führt feuchte Luft mit sich. Der beschriebene Prozess entspricht einer thermal gesteuerten Zirkulation. Diese ist in die globale Zirkulation eingebunden. Durch ihre Lage in

den Tropen und Subtropen wird sie vor allem durch die beiden Hadley-Zellen und deren Aufeinandertreffen in der innertropischen Konvergenzzone (ITCZ) beeinflusst. In der unteren Troposphäre strömen die Luftmassen der beiden Hadley-Zellen in der ITCZ zusammen und steigen dort in die obere Troposphäre auf. Bei den bodennahen Winden handelt sich dabei um den Nordostpassat der Nordhemisphäre und den Südostpassat der Südhemisphäre. Die Position der ITCZ ist saisonal variabel und wird zum einen von der maximalen Sonneneinstrahlung bestimmt und zum anderen von der Verteilung von Kontinent und Ozean. Am stärksten wird sie im Nordhemisphärensommer über dem indischen Subkontinent verschoben (Abbildung 1.1(b)). Dies ist vor allem der großen Landmasse von Asien mit weiter Ost-West-Erstreckung und dem Himalaya, als hochreichendem Gebirge, zuzuschreiben. Durch die starke Erwärmung dieser Landmasse kann sich die ITCZ über Asien im Juli bis ca.  $30^\circ$  N verlagern (Yan (2005)).

Somit wird die oben beschriebene thermale Monsunzirkulation von der Südhemisphäre beeinflusst. Der bodennahe, konvergente Wind über dem indischen Subkontinent stammt aus dem Südwestwind über dem Arabischen Meer. Dieser hat seinen Ursprung im Südostpassat der Südhemisphäre und wird durch die Corioliskraft beim Überströmen des Äquators in einen Südwestpassat (Kraus (2007)).

Die mit dem Südwestpassat transportierte feuchte Luft erhöht die zur Verfügung stehende latente Energie über dem indischen Subkontinent. Im Bereich der Konvergenz am Boden werden die Luftmassen zum Aufsteigen gezwungen. Dieser Bereich ist in Abbildung 1.2 mit „*source*“ gekennzeichnet. Durch die Konvektion kommt es zur Cumuluswolkenbildung, starkem Niederschlag und dem Freisetzen von latenter Wärme. Diese zusätzliche Energie wird der thermalen Zirkulation zugeführt und kann damit bis in die obere Troposphäre fortgesetzt werden, bis in eine Höhe von ca. 200 hPa. Dort findet auch das stärkste Ausströmen statt, darüber übernimmt Advektion den vertikalen Transport (Park et al. (2009)). Im Gegensatz dazu wäre die Zirkulation in einer trockenen Atmosphäre nicht so stark ausgeprägt und würde sich nur auf den unteren Bereich der Atmosphäre ausdehnen, da die latente Wärme im System fehlen würde.

Die Konvergenz am Boden und die Divergenz in der Höhe erzeugen zusätzlich eine sekundäre Zirkulation über dem Kontinent, da die Corioliskraft entgegen der dort herrschenden Druckgradientkraft wirkt. Dies führt zu einer zyklonalen Vorticity, also Wirbelbewegung, in der unteren Troposphäre und einer antizyklonalen Vorticity in der oberen Troposphäre. Die Strömung strebt das geostrophische Gleichgewicht an, also das Gleichgewicht zwischen der Druckgradientkraft und der Corioliskraft (Kraus (2007)) und es kann sich eine geschlossene antizyklonale Strömung in der oberen Troposphäre ausbilden. Diese ist die asiatische Monsun Antizyklone und in Abbildung 1.2 dargestellt.

Die Geographie bestehend aus dem asiatischen Kontinent und dem Indischen Ozean

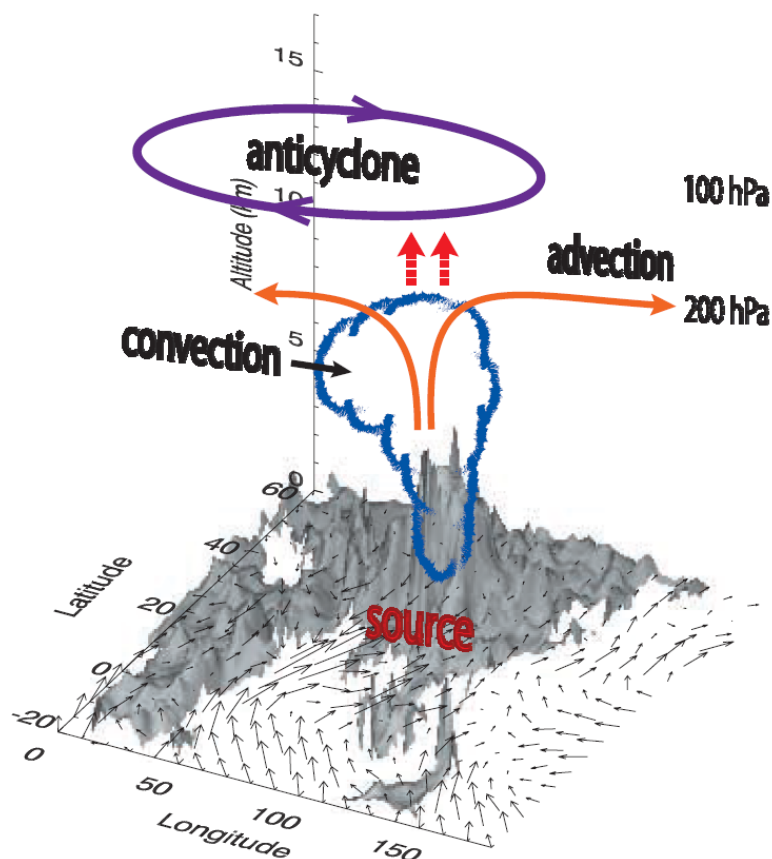


Abbildung 1.2.: Schema des indischen Sommermonsuns mit Transportwegen nach Park et al. (2009): Vektoren stellen den Oberflächenwind dar, graue Schattierung die Topographie, blau ist die Konvektion mit darunterliegender Quellregion („source“), orange Pfeile stellen auf 200 hPa den horizontalen Transport dar, rot-gestrichelte Pfeile zeigen den advektiven Vertikaltransport oberhalb von 200 hPa und die asiatische Monsun Antizyklone (AMA) ist mit violett auf 100 hPa zu sehen.

in Kombination mit der globalen Zirkulation bilden die Grundlage für den indischen Sommermonsun, welcher durch sein Ausmaß eine wichtige Größe in der Atmosphäre darstellt. Er bestimmt verschiedene meteorologische Prozesse, wie Regenintensität und -verteilung in Südasien, und globale Austauschprozesse in der Atmosphäre zwischen unterer und oberer Troposphäre bis in die Stratosphäre. Die Tiefdruckrinne, welche sich am Boden ausbildet, breitet sich von Nordwestindien bis zur nördlichen Spitze des Golfs von Bengalen aus und verläuft fast parallel zum Himalaya (Dash (2005)). Neben dem konvektiven Regen werden starke orographische Regenfälle durch das Aufsteigen von feuchter Luft am Himalaya ausgelöst. Die Monsunzirkulation wird außerdem von verschiedenen zyklonalen Störungen beeinflusst, wobei sich das tägliche Wetter auf einer synoptischen Skala von 5 – 7 Tagen auswirkt. Ausgedehnte Trockenzeiten von 2 – 3 Wochen, sogenannte „Breaks“, sind meistens verbunden mit einer Abnahme der zyklonalen Vorticity und einer Zunahme des Bodendrucks über Zentralindien, einhergehend mit einer Verlagerung der Tiefdruckrinne nach Norden bis an die Ausläufer des Himalayas (Lau et al. (2012)). Durch die Ausbildung der Antizyklone in der oberen Troposphäre wirkt sich der in-



dische Sommermonsun auch auf die obere Troposphäre aus. Die Antizyklone breitet sich über einem Gebiet zwischen Südasien und Nahem Osten aus und hat ihr klimatologisches Zentrum zwischen  $50 - 95^\circ \text{E}$  und  $25 - 35^\circ \text{N}$  (Nützel et al. (2016)). Die AMA wird im Norden vom Subtropenjet und im Süden vom Tropenjet eingerahmt, dazwischen bildet sie eine starke Zirkulation aus. Auf Grund der angrenzenden Jets ist diese im Norden und Süden am stärksten ausgeprägt. Das AMA-Zentrum verlagert sich während der Monsunzeit, wobei es nach Zhang et al. (2002) zwei bevorzugte Lagen gibt: den iranischen und den tibetischen Mode. Der Erste hat sein Zentrum über dem Iranischen Hochland und der zweite über der Tibetischen Hochebene. Die AMA erstreckt sich vertikal von der oberen Troposphäre bis in die untere Stratosphäre (10 – 16 km, Randel and Park (2006)). Die tropische Tropopausenschicht dehnt sich von ca. 10 – 12 km bis ca. 16 – 17 km aus (Gettelman and Forster (2002)). Bis in diese Höhe kann sich die AMA ausstrecken. Im Norden wird sie zum einen durch den Subtropenjet begrenzt und zum anderen durch das steile Abfallen der Tropopause hin zu den mittleren Breiten, was im Nordhemisphärensommer bei ca.  $40 - 50^\circ \text{N}$  stattfindet (Gettelman et al. (2002)). Die AMA wird vor allem durch das diabatische Erwärmen, also durch die latente und die Strahlungsenergie, erzeugt (Gill (1980)) und ist damit die lineare Antwort auf die hochreichende Konvektion (Hoskins and Rodwell (1995)), welche in der oben erwähnten thermalen Zirkulation zu finden ist. Sie ist in die globale Zirkulation eingebunden und damit auch von dieser beeinflusst, sodass sie sich während der Monsunzeit verändert. Die Lage der AMA variiert in Ost-West-Richtung, da sie sich in einem 10 – 20 Tage-Zyklus nach Westen ausbreitet, was mit den *Breaks* des Monsuns am Boden einhergeht (Krisnamurti and Ardanuy (1980)). Dieses Strecken kann zu internen Instabilitäten in der AMA-Zirkulation führen, sodass es zu Wirbelablösungen (engl. *eddy shedding*) kommen kann (Hsu and Plumb (2000), Popovic and Plumb (2001)). Hierbei können sich Teile der Antizyklone von der Hauptantizyklone lösen, wobei dies durch die Weststreckung am westlichen AMA-Rand stattfindet. Die Antizyklone kann sich aber auch in eine westliche und eine östliche Antizyklone aufspalten.

Eine Möglichkeit für extern gesteuerte Instabilitäten wird in Dethof et al. (1999) beschrieben. Ein synoptisch-skaliger Zyklon in den mittleren Breiten zieht nördlich von der AMA mit dem Subtropenjet nach Osten. Dabei entsteht ein Kamm vor dem Zyklon. In diesem wird AMA-Luft advektiv auf einer Isotropenfläche aus der Antizyklone heraustransportiert und irreversibel mit der Umgebung vermischt. Die Luftmasse wird dabei nach Norden transportiert und somit durch die Tropopause in die Stratosphäre eingetragen.

Die Dynamik der AMA beeinflusst somit zum einen die globale Zirkulation und zum anderen beeinflusst sie damit einhergehend auch den Transport von Spurengasen in der Atmosphäre. Die Konvektion und damit der Vertikaltransport von Luftmassen aus der unteren Troposphäre in die AMA findet bevorzugt am südöstlichen AMA-

Rand statt (Park et al. (2007)). Nach Bergman et al. (2013) beschränkt sich die Konvektion außerdem in ihrer horizontalen Erstreckung und bildet vielmehr eine Art Kamin, welcher vor allem zwischen der Indo-Ganges-Ebene und Nordostindien positioniert ist. Emissionen aus diesem Gebiet werden in die obere Troposphäre transportiert und in die AMA eingetragen. Der konvektive Transport ist dabei bis zu einer Höhe von ca. 200 hPa die treibende Kraft, anschließend werden die Luftmassen horizontal transportiert oder zum Teil durch Advektion von großskaligen Winden weiter vertikal transportiert (Abbildung 1.2, Park et al. (2009), Park et al. (2008)). Für das Auffüllen der AMA mit Luftmassen aus der unteren Troposphäre findet nach Bergman et al. (2013) eine Aufweitung des Kamins ca. 20 hPa unterhalb von 200 hPa statt, sodass die Luftmassen horizontal über die gesamte AMA verteilt werden können. Auf Grund der Zirkulation stellt die AMA eine Transportbarriere für Luftmassen dar und verhindert ihr Ausströmen in ihre Umgebung. Folglich sind die Luftmassen in der AMA eingeschlossen. Dies führt zu einem eindeutigen chemischen Fingerabdruck der AMA.

Dennoch ist es für Luftmassen möglich aus der AMA auszuströmen. Die Möglichkeiten für Luftmassen die AMA zu verlassen können in extern und intern gesteuert unterteilt werden und verursachen meist Instabilitäten in der AMA. Als extern kann das von Dethof et al. (1999) beschriebene Ausströmen am nordöstlichen Rand betrachtet werden, wie es oben beschrieben wurde. Der Transport kann aber auch mit dem Subtropenjet nach Osten Richtung Pazifik erfolgen (Dethof et al. (1999), Jiang et al. (2007)). Hierbei fließen Luftmassen am nordöstlichen Rand aus der AMA. Interne Instabilitäten wirken sich häufig auf die Zirkulation aus. Das Windfeld wird verändert oder abgeschwächt, sodass sich die Transportbarriere der AMA abschwächt und es für Luftmassen einfacher ist aus der AMA auszuströmen. Ein Weg für das Ausströmen von Luftmassen aus der AMA ist mittels der westwärts gerichteten Wirbelablösung möglich. Sie startet mit einer Streckung der Antizyklone nach Westen, bis diese soweit gedehnt ist, dass sie auseinander bricht und eine zweite Antizyklone sich von der Hauptantizyklone im Westen ablöst (Popovic and Plumb (2001)). Während des Prozesses können die Spurengase aus der AMA ausströmen, da die Transportbarriere durch das Auseinanderbrechen in dem Übergangsbereich geschwächt ist.

## 1.2. Rolle von Kohlenmonoxid und Methan in der oberen Troposphäre

Spurengase wie  $CO_2$  (Kohlenstoffdioxid),  $CH_4$ ,  $CO$ ,  $NO$  (Stickstoffmonoxid),  $NO_2$  (Stickstoffdioxid),  $HCHO$  (Formaldehyd) und  $O_3$  (Ozon), spielen eine wichtige Rolle in der Atmosphäre. Ihre Konzentrationen sind im sub-ppb<sup>1</sup> bis ppm<sup>2</sup>-Bereich und sind in Zeit und Raum variabel, vor allem unter dem Einfluss von Emissionen. In dieser Arbeit werden  $CO$  und  $CH_4$  untersucht. Sie haben sowohl natürliche, als auch anthropogene Emissionsquellen.  $CO$  stammt vor allem aus Verbrennungsprozessen von fossilen Brennstoffen, Biomasse oder privatem Hausmüll, außerdem wird es zum Teil auch von Meeren und der Vegetation emittiert (Pandis and Seinfeld (2006)).  $CH_4$  wird ebenfalls bei der Verbrennung von fossilen Brennstoffen und Biomasse emittiert (Khalil (2000)). Des Weiteren wird es von Überflutungs- und Feuchtgebieten freigesetzt. Eine weitere Quelle bildet die Landwirtschaft mit Reisanbau und wiederkäuenden Nutztieren. Durch das starke wirtschaftliche Wachstum im Einzugsgebiet der AMA-Konvektion, nehmen die Emissionen dort weiter zu (Ohara et al. (2007)).

Die Spurengase haben sowohl einen direkten, als auch einen indirekten Strahlungsantrieb. Beim direkten absorbieren sie Strahlung und beim indirekten durchlaufen sie chemische Prozesse, sodass ihre Ausgangsprodukte einen Einfluss auf den Strahlungsantrieb der Atmosphäre haben. Die Chemie der Atmosphäre wird von vielen Faktoren beeinflusst und strebt nach einem chemischen Gleichgewichtszustand. Sie hängt von Temperatur, Druck, Strahlung, Emissionsquellen, und dem Niederschlag, bzw. dem Wasserdampf ab. Sie variiert zeitlich und räumlich. Eine der wichtigsten Komponenten in der Atmosphärenchemie ist das Hydroxylradikal ( $OH$ ). Seine Menge wird von Wasser ( $H_2O$ ),  $CH_4$ ,  $CO$ ,  $NO$ ,  $O_3$  und dem solaren Strahlungsfluss in der Troposphäre bestimmt. Je nach Änderung in den einzelnen Komponenten wirkt sich das auf die Konzentration von  $OH$  aus. Die Hauptreaktionspartner im atmosphärischen Hintergrund sind  $CO$  und  $CH_4$ .

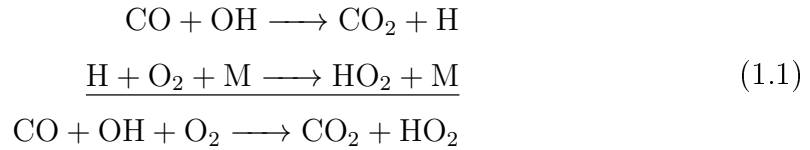
Die Oxidationsprozesse von  $CH_4$  und  $CO$  werden im Folgenden im Detail erläutert (Pandis and Seinfeld (2006)).  $CO$  reagiert mit  $OH$  zu Kohlenstoffdioxid ( $CO_2$ ), wobei ein Wasserstoffatom ( $H$ ) entsteht. Das  $H$ -Atom reagiert sehr schnell mit Sauerstoff ( $O_2$ ) und einem Stoßpartner ( $M$ , z.B.  $N_2$  (Stickstoff)) zu einem Hydroperoxyradikal ( $HO_2$ ). Da diese beiden Reaktionen sehr schnell hintereinander ablaufen,

---

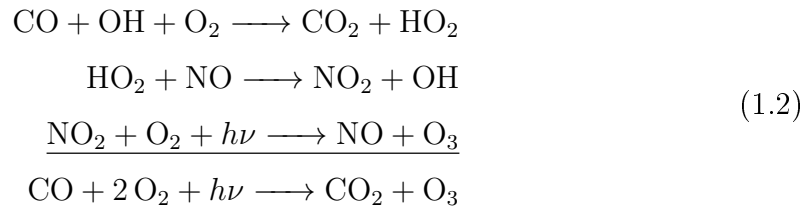
<sup>1</sup>ppb: parts per billion (1 ppb =  $1 \times 10^{-9}$ )

<sup>2</sup>ppm: parts per million (1 ppm =  $1 \times 10^{-6}$ )

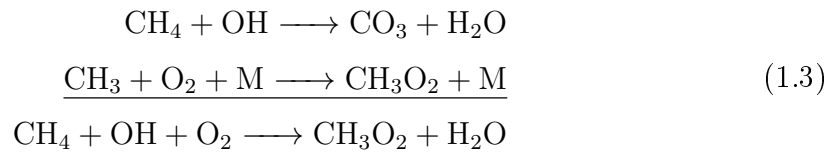
werden sie unter der Beteiligung von  $O_2$  zusammengefasst.



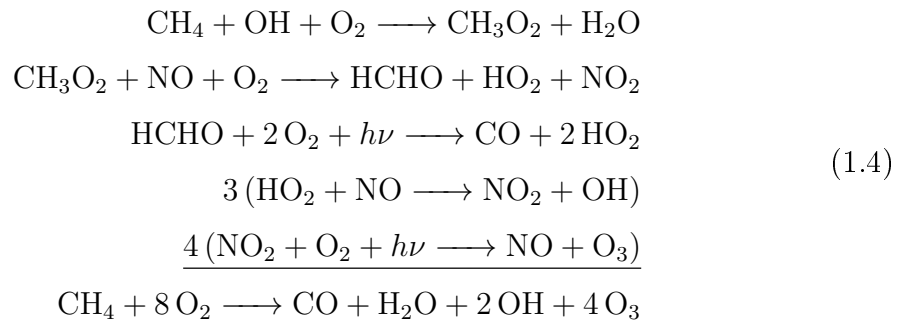
Wenn die  $NO_x (= NO + NO_2)$ -Konzentration in der Atmosphäre groß genug ist, dann reagiert das bei der  $CO$ -Oxidation entstandene  $HO_2$  mit  $NO$  und geht keine Selbstreaktion ein. Dabei entsteht  $OH$  und  $NO_2$ , wobei letzteres durch Photooxidation  $O_3$  produziert. Folglich kann durch  $CO$ -Oxidation  $O_3$  entstehen.



$CH_4$  wird ebenfalls durch  $OH$  oxidiert. Dabei entsteht das Methylradikal ( $CH_3$ ), welches sofort weiter mit  $O_2$  zu dem Methylperoxyradikal ( $CH_3O_2$ ) reagiert. Somit werden die beiden Reaktionen, ähnlich wie bei  $CO$ , zu einer Reaktion kombiniert.



Auch durch die  $CH_4$ -Oxidation kann  $O_3$  entstehen. Hierfür muss, wie auch bei der  $CO$ -Oxidation, die  $NO_x$ -Konzentration hoch genug sein, damit sowohl  $HO_2$ , als auch  $CH_3O_2$  nur mit  $NO$  reagieren und in der Folge  $HCHO$  photolysiert wird.



Die Oxidationen von  $CO$  und  $CH_4$  mittels  $OH$  bestimmen sowohl die Konzentration von  $OH$ , als auch von  $O_3$ , wobei zusätzlich das zur Verfügung stehende  $NO_x$  seinen Einfluss ausübt. Durch die Reaktion mit  $OH$  wird das Verhältnis von  $OH$  zu  $HO_x (= OH + HO_2)$  bestimmt. Damit wirken sich auch die Ausgangskonzentrationen von  $CO$  und  $CH_4$  auf die  $OH$ -Konzentration aus. Bei steigendem  $CO$  und  $CH_4$  steigt

auch die  $OH$ -Konzentration an. Je nach  $NO_x$ -Konzentration verlaufen unterschiedliche Anschlussreaktionen an die Oxidation, entweder über  $HO_x$ - $HO_x$ -Reaktionen (wenig  $NO_x$ ) oder über  $HO_x$ - $NO_x$ -Reaktionen (viel  $NO_x$ ) ab. Ist ausreichend  $NO_x$  vorhanden, so reagiert das entstandene Peroxyradikal mit  $NO$  und bildet  $O_3$ . Bei einem Anstieg der Konzentrationen von  $NO$  und  $O_3$  steigt auch die  $OH$ -Konzentration an, sodass sich das  $OH$  zu  $HO_x$ -Verhältnis ändert.  $CH_4$  und  $CO$  beeinflussen sich außerdem gegenseitig. Bei der Oxidation von  $CH_4$  entsteht  $CO$  durch die Oxidation von  $HCHO$ . Damit ist ein Hauptprodukt der  $CH_4$ -Oxidation  $CO$ , folglich ist die  $CO$ -Oxidation ein Teil der  $CH_4$ -Oxidation.  $OH$  ist die wichtigste Senke für  $CH_4$ , sodass die  $OH$ -Konzentration auch die Oxidation bestimmt und damit die Stärke der  $CH_4$ -Senke. Die hier beschriebenen Prozesse finden in der oberen Troposphäre statt. In der unteren Troposphäre gestaltet sich die Chemie durch die vorhandenen Emissionen komplexer.

Mit der Konvektion werden verschmutzte Luftmassen vertikal nach oben transportiert. Auf dem Weg in die obere Troposphäre scheidet ein Teil der am Boden aufgenommenen Spurengase aus Emissionen durch verschiedene Prozesse aus dem Transport aus. Durch Regen werden Teile der Spurengase aus der Atmosphäre ausgewaschen (nasse Deposition) und ein anderer Teil wird durch trockene Deposition aus der Atmosphäre entfernt. Außerdem werden kurzlebige Spurengase durch Reaktionen umgewandelt, bevor sie die obere Troposphäre erreichen. Je länger die Lebenszeit von Spurengasen in der Atmosphäre ist, desto länger halten sie sich in der Atmosphäre auf und können über große Distanzen transportiert werden.  $CH_4$  hat eine Lebenszeit von 8 – 9 Jahren (Lelieveld et al. (2016), Naik et al. (2013)) und  $CO$  eine von 2 – 3 Monaten (Garny and Randel (2013), Xiao et al. (2007)). Sie überstehen damit den Vertikaltransport in die AMA und können sich somit in dieser anreichern. Sie tragen so zum chemischen Abdruck der AMA in der oberen Troposphäre bei. Durch die Zirkulation der AMA werden Spurengase, welche konvektiv in die Antizyklone transportiert werden, in dieser eingefangen, sodass sich dort untypisch hohe Konzentrationen für die obere Troposphäre ergeben. Dies hat weitreichende Auswirkungen auf die dort ablaufende Chemie.

Der chemische Abdruck der AMA wurde anhand von Spurengasen in Satellitendaten beobachtet. In der AMA zeigen troposphärische Spurengase erhöhte Konzentrationen im Vergleich zur Umgebung. In der Literatur sind Studien für  $H_2O$  (z.B. Park et al. (2007)),  $CO$  (z.B. Garny and Randel (2013)),  $CH_4$  (z.B. Xiong et al. (2009)) und weiteren Spurengasen (z.B. Park et al. (2008)) zu finden. Spurengase, wie  $O_3$ , mit stratosphärischem Ursprung zeigen geringere Konzentrationen in der AMA als außerhalb (z.B. Yan et al. (2011)). Neben diesen Beobachtungen wird die AMA auch mit Hilfe von Modellen untersucht (z.B. Pan et al. (2016), Ploeger et al. (2015)). Des Weiteren gibt es flugzeuggetragene in situ-Messungen. In zwei Großprojekten in Kooperation mit Fluggesellschaften werden regelmäßig Daten entlang der Flugrouten

von Linienflügen aufgezeichnet. Hierzu zählt das CARIBIC (Civil Aircraft for the Regular Investigation of the atmosphere Based on Instrument Container)-Projekt (z.B. Baker et al. (2011), Rauthe-Schöch et al. (2016)) und das MOZAIC (Measurement of OZone by Airbus In-service airCRAFT)-Projekt (z.B. Dethof et al. (1999)). Diese Art von Messungen haben den Vorteil, dass sie eine lange Zeitreihe erstellen; allerdings sind sie in der Flughöhe begrenzt. Außerdem gibt es in situ-Messungen von Intensivkampagnen mit Forschungsflugzeugen. So wurde während ESMVal (Earth System Model Validation) ein Randbereich, bzw. Ausläufer der AMA über dem Arabischen Meer im September 2012 durchflogen (Gottschaldt et al. (2017)). Weitere Einflüsse der AMA in der oberen Troposphäre wurden über dem Mittelmeer während MINOS (Mediterranean INTensive Oxidant Study) im Sommer 2001 gemessen (z.B. Lelieveld et al. (2002), Scheeren et al. (2003)).

Das Ziel dieser Arbeit ist die Erweiterung des Verständnisses bezüglich der Transportwege von Spurengasen in der oberen Troposphäre im Zusammenhang mit der asiatischen Monsun Antizyklone. Hierfür werden die Verteilungen der Spurengase  $CH_4$  und  $CO$  in der oberen Troposphäre, welche von der AMA abhängig sind, untersucht. Einerseits sorgt die AMA-Zirkulation für eine chemische Isolierung mit hohen Spurengasmischungsverhältnissen in der Antizyklone, andererseits ist ein Ausströmen von Spurengasen aus der AMA auf Grund ihrer Dynamik möglich. Das Ausströmen ermöglicht den Langstreckentransport von Spurengasen außerhalb der AMA und wird in dieser Arbeit vor allem in Richtung Westen untersucht. Die chemische Isolierung und das Ausströmen werden in dieser Arbeit mit flugzeuggetragenen in situ-Messungen und Modelldaten nachgewiesen. Um die Transportwege der Spurengase  $CH_4$  und  $CO$  zu identifizieren, werden die Ursprungsregionen, die Konvektionsgebiete, sowie die Transportwege in der oberen Troposphäre mit Modellsimulationen und Rückwärtstrajektorien ermittelt. Dies führt zu einer Erweiterung der Erkenntnisse über die Dynamik der AMA und die Transportprozesse von Spurengasen, vor allem in der oberen Troposphäre. Außerdem kann somit die Auswirkung des indischen Sommermonsuns auf die obere Troposphäre dargestellt werden. Der Schwerpunkt liegt hier vor allem auf der Dynamik der AMA und dem Langstreckentransport von Spurengasen und liefert damit einen Beitrag zur Vertiefung des Verständnisses über die Transportprozesse in der oberen Troposphäre. Dieser Aspekt ist wichtig um die Kenntnisse bezüglich der AMA zu erweitern, da die AMA immer noch nicht vollständig verstanden ist.

## 2. Methoden

### 2.1. Messinstrument TRISTAR

Für den experimentellen Teil der Arbeit ist das flugzeuggetragene Messinstrument TRISTAR (engl. *T*Racer *I*n – *S*itu *T*unable *d*iode *l*aser *a*bsorption *s*pectrometer *f*or *A*tmospheric *R*esearch) , ein Absorptionsspektrometer mit durchstimmbaren Lasern im infraroten Bereich, zum Einsatz gekommen. Es hat die Spurengase  $HCHO$ ,  $CO$  und  $CH_4$  gemessen.



Abbildung 2.1.: TRISTAR (links) in HALO (Quelle: Rolf Hofmann, MPIC).

#### 2.1.1. Messprinzip

Die Absorptionsspektroskopie basiert auf dem spektralen Absorptionsvermögen von Gasen und folgt dem Lambert-Beer'schen Gesetz. Es beschreibt die Intensität  $I(\nu)$  einer elektromagnetischen Welle der Frequenz  $\nu$ , wenn sie durch ein Volumen transmittiert, welches mit einer absorbierenden Spezies gefüllt ist (2.1).

$$I(\nu) = I_0(\nu) \exp(-n\sigma(\nu)l) \quad (2.1)$$

mit der transmittierten Intensität der Strahlung ohne Absorption  $I_0(\nu)$ , der Teilchenzahldichte  $n$ , dem Absorptionsquerschnitt  $\sigma(\nu)$  und der optischen Weglänge  $l$ . Durch die Bestrahlung mit bestimmten Wellenlängen werden Spurengase zu Schwingung und Rotation angeregt. In diesem Zustand haben Spurengase spezifische Schwingungsrotationsspektren und nehmen Energie auf. Dies sorgt je nach Wellenlänge bei bestimmten Spurengasen für eine Abschwächung der elektromagnetischen Strahlung. Viele Spurengase in der Atmosphäre, wie z.B.  $HCHO$ ,  $CO$ ,  $CH_4$ ,  $N_2O$  (Distickstoffmonoxid),  $H_2O_2$  (Wasserstoffperoxid), zeigen eine moderate bis starke Absorption im infraroten Spektralbereich, sodass durch eine gute Selektivität der Wellenlänge nur mit geringen Interferenzen zu rechnen ist. Diese werden weiter minimiert, da durch eine Druckreduzierung im Messvolumen die Druck- und Stoßverbreiterung der Absorptionslinie reduziert wird. Die Absorptionslinie wird so verschmälert, wobei der Linienmittelpunkt bestehen bleibt und es zu keinen Sensitivitätsverlusten kommt. Außerdem wird die Absorptionsweglänge vergrößert durch den Einsatz einer Multireflexionszelle nach White (1976). Des Weiteren wird ein Modulationsverfahren verwendet um die Detektionsfrequenz zu erhöhen. Hierfür wird der Betriebsstrom des Lasers mit einer Frequenz von 20 kHz moduliert während er die Absorptionslinie abtastet. Am Detektor wird das Signal anschließend mit der doppelten Modulationsfrequenz demoduliert. Mit der Modulation und der Demodulation mit einer kleineren Bandbreite wird das optische Rauschen des Spektrometers, sowie das  $1/f$ -Rauschen minimiert (Schiller et al. (2008)). Durch die genannten Maßnahmen verbessern sich die Nachweisgrenzen der Absorptionsspektroskopie, sodass sie sich gut für Spurengasmessungen in der Atmosphäre eignet.

### 2.1.2. Aufbau TRISTAR

TRISTAR ist ein kompakt konstruiertes Messgerät für den Einsatz im Flugzeug. Es ist zusammen mit dem Peroxidmonitor HYPHOP in ein 19"-Rack unter der Bezeichnung TRIHOP integriert.

In Abbildung 2.2 ist der mechanische Aufbau der Basisplatte von TRISTAR dargestellt. Er setzt sich aus einem Laserkryostat, drei Quantenkaskadenlasern (QCL = Quantum Cascade Laser), einer Messzelle, zwei Detektoren, zwei Hubspiegeln und weiteren Spiegeln zum Lenken und Fokussieren der Laserstrahlen zusammen (Bozem (2010), Schiller et al. (2008)). Die Basisplatte sitzt auf Schwingungsdämpfern um



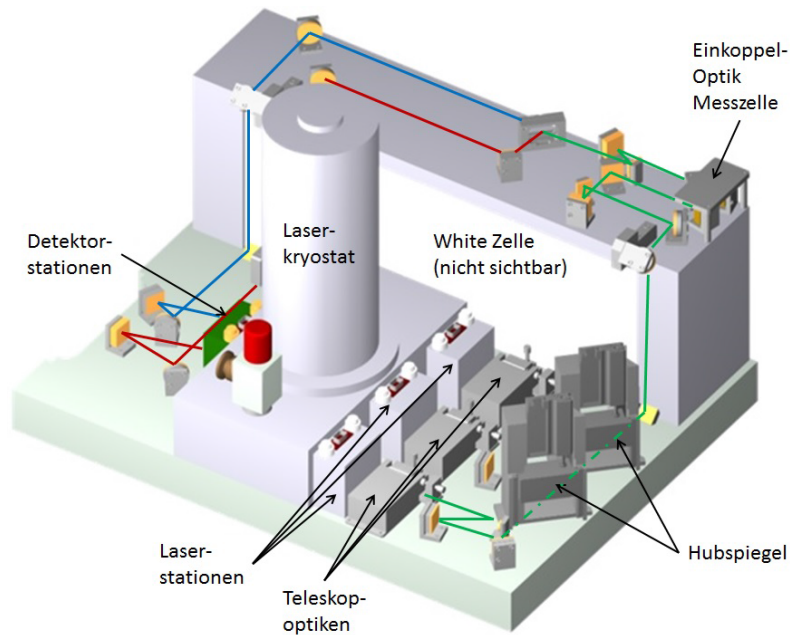


Abbildung 2.2.: Schema des optischen Aufbaus von TRISTAR nach Gute (2014).

sie vor Stößen und Vibrationen im Flugzeug zu schützen.

Der Laserkryostat, welcher vom Institut für Luft- und Kältetechnik (ILK) in Dresden (Deutschland) entwickelt wurde, hat Kühlfinger aus Kupfer, worüber die Laserkristalle und die Detektoren permanent mit dem Flüssigstickstoff verbunden sind und so gekühlt werden. Die drei Laser werden aktiv beheizt, um sie mit einer Genauigkeit im mK-Bereich konstant auf ihrem Sollwert zu halten, welcher in einem Temperaturbereich von 90 – 130 K liegt. Jeder Laserstrahl wird über Spiegel geleitet, welche ihn fokussieren und kollimieren. Mit den pneumatischen Hubspiegeln wird immer nur einer der drei Laserstrahlen in die Messzelle eingeführt, dies wird Zeitmultiplexing genannt. Bei diesem Verfahren werden die Gase im Wechsel gemessen. Die Messzelle ist eine Multireflexionszelle nach White (1976) mit einer Länge von 0.5 m und 128 Reflexionen, sodass der Laserstrahl 64 m in der Messzelle zurücklegt. Anschließend wird er in einen Signal- und einen Referenzkanal aufgespalten. Im Referenzkanal stehen Glasküvetten gefüllt mit den zu messenden Spezies ( $HCHO$ ,  $CO$  und  $CH_4$ ) und einem Druck von 30 – 50 hPa. Anschließend werden die beiden Kanäle auf die beiden photovoltaischen Quecksilber-Cadmium-Tellurid-Detektoren der Firma Kolmar Technologies (USA) geleitet. Diese arbeiten sehr stabil bei einer Temperatur von  $78.5 \pm 0.5$  K. Durch die permanente Verdampfung begrenzt der Flüssigstickstoffvorrat die Betriebsdauer des TRISTAR auf 8 – 11 h.

Der Einlass vom TRIHOP für Außenluftmessungen ist auf der Oberseite des Forschungsflugzeugs HALO montiert und führt die Außenluft, wie in Abbildung 2.3 zu sehen, durch eine Verteilereinheit (engl. *Manifold*) und einen Bypass. Mittels des Bypass ist eine höhere Durchflussrate im Einlass möglich, womit die Aufenthaltsdauer der Probenluft dort reduziert ist. Am *Manifold* wird die Außenluft für das

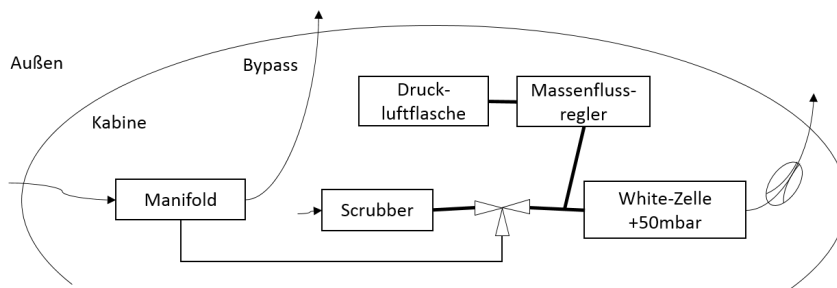


Abbildung 2.3.: Schema des Gaslaufplans für TRISTAR in HALO.

TRISTAR entnommen. Von dort wird sie über ein Drei-Wege-Magnetventil, durch die Whitezelle und eine Pumpe geleitet, anschließend wird sie über eine Abgasleitung aus dem Instrument geführt.

$HCHO$  ist nur in geringen Konzentrationen in der Atmosphäre vorhanden, sodass die Absorption des Laserstrahls nur gering ist. Dies führt zu starken Rauschsignalen des Instruments und damit zu einem schlechten Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Um dieses Verhältnis zu verbessern, werden Hintergrundmessungen für  $HCHO$  mit einem Scrubber realisiert und ebenfalls über das Drei-Wege-Magnetventil in die Messzelle geleitet (siehe Abbildung 2.3). Der Scrubber ist mit Platin gefüllt und wurde während der Flugzeugkampagne OMO auf  $80^\circ\text{C}$  geheizt. Für die Hintergrundmessungen wurde Kabinenluft verwendet, da diese die geringsten Druckschwankungen durch den Wechsel von Außenluft auf Hintergrundmessung in der Messzelle verursacht. Der Druck in der Whitezelle wurde während OMO auf ca. 50 hPa geregelt. Für die sogenannten „In flight“-Kalibrationen von  $CO$  und  $CH_4$  wurde Luft aus 6 L-Druckluftflaschen (Hersteller: MSA AUER GmbH, Berlin) verwendet.

### 2.1.3. Modifikationen für OMO

In der Vorbereitung auf die Flugzeugkampagne wurden am TRISTAR einige Veränderungen vorgenommen. Die Kühllankopplung zwischen den Lasern und dem Laserkryostat wurde modifiziert mit dem Ziel den Flüssigstickstoffverbrauch zu reduzieren, damit längere Messungen durchgeführt werden können. Hierfür wurden die Kühllankopplungen für Laser B ( $CO$ ) und C ( $CH_4$ ) abgeschwächt und die Laserarbeitspunkte verändert, sodass sie bei einem geringeren Strom betrieben werden konnten. Zusätzlich wurde das Vakuum am Laserkryostat verbessert. Die Qualität des Vakuums ist der dominierende Faktor um den Flüssigstickstoffverbrauch zu senken. Je besser das Vakuum ist, desto schlechter ist die Wärmeankopplung zwischen dem Inneren des Kryostats und der Umgebung, wodurch weniger Flüssigstickstoff pro Zeiteinheit verdampft und der Vorrat so länger hält. Deshalb wurde das Vakuum während der Kampagne erneut verbessert.

Die Basisplatte wird auf 35 °C geheizt, um den optischen Aufbau gegen Temperaturschwankungen der Umgebung zu stabilisieren. Diese Schwankungen beeinträchtigen die Qualität der Messungen. Der Heizzyklus von 20 s hat wandernde Etalonstrukturen auf dem *HCHO*-Signal erzeugt. Mit einer Reduktion des Heizzyklus auf 2 s wurden die Temperaturschwankungen der Basisplatte verringert und folglich wurden die wandernden Etalonstrukturen schwächer.

Für die Kalibrationen von *CO* und *CH<sub>4</sub>* wurde hinter der Druckluftflasche ein Massenflussregler eingebaut (Abbildung 2.3), welcher mit einem Druck von 2 – 8 bar arbeiten kann. Das Kalibrationsgas wird anschließend über ein T-Stück zwischen Drei-Wege-Ventil und Whitezelle in den Gasfluss eingespeist. Zusätzlich wurde noch ein Überdruckventil nach dem Massenflussregler eingesetzt, welches Druckstöße in der Whitezelle verhindern soll.

Des Weiteren werden die pneumatischen Hubspiegel, welche für den Wechsel zwischen den drei Spurengasmessungen eingesetzt werden, mit Hilfe eines Kompressors bewegt.

#### 2.1.4. Datenaufzeichnung und -auswertung

Für die Steuerung des Spektrometers und die Datenaufzeichnung steht eine Elektronikeinheit zur Verfügung. Diese ist vergleichbar mit der Elektronikeinheit im QUALITAS (*QUAntum cascade Laser Instrument for mid – infrared Trace gas Absorption Spectroscopy*), welche in Kormann et al. (2005) beschrieben ist.

Für die flugzeuggetragenen Messungen mit Geschwindigkeiten von im Durchschnitt 200 – 250  $\frac{\text{m}}{\text{s}}$  ist eine hohe zeitliche Auflösung wichtig. Die Datenaufzeichnung von TRISTAR ist dafür geeignet, da zunächst Einzelspektren von 0.5 s detektiert und anschließend mehrere Datenpunkte zu einem zusammengefasst werden. Die Frequenz für das Abspeichern der Datenpunkte und damit die Anzahl der Einzelspektren pro Datenpunkt wurde während der Kampagne aus technischen Gründen verringert. Des Weiteren wurde der Arbeitszyklus, also die Zeitspanne, in der jedes Gas einmal gemessen wird, von 12.5 s auf 35 s verlängert. Hintergrundmessungen (engl. *background*, Bgd) für *HCHO* wurden in Intervallen von 2.4 – 5.9 min durchgeführt und die Kalibrationen (engl. *calibration*, Cal) für *CO* und *CH<sub>4</sub>* in Intervallen von 12 – 36 min.

Die Auswertung wird mit IGOR von der Firma Wavemetrics durchgeführt. Die gespeicherten Absorptionsspektren stellen Relativmessungen dar. Daher werden die Spektren der Außenluftmessungen von *CO* und *CH<sub>4</sub>* mit denen der *In flight*-Kalibrationen verglichen, um die Konzentrationen zu bestimmen. Hierbei wird zwischen zwei Kalibrationen linear interpoliert. Eine detaillierte Beschreibung der Aus-

wertung befindet sich in Bozem (2010). Für  $HCHO$  werden zunächst die Hintergrundspektren von den Außenluftspektren abgezogen, wobei zwischen zwei Hintergrundmessungen interpoliert wird. Des Weiteren gibt es keine *In flight*-Kalibrationen für  $HCHO$ , sodass Kalibrationsspektren verwendet werden, welche während der Kampagne am Boden mit einer  $HCHO$ -Permeationsquelle gemessen wurden. Diese Spektren wurden anschließend manuell an den Anfang jedes  $HCHO$ -Datensatzes, also für jeden Flug, eingefügt.

Des Weiteren wurden die  $CO$ - und  $CH_4$ -Daten nicht auf den Wassergehalt in der Atmosphäre hin korrigiert, da wegen technischer Probleme keine in situ-Wasserdaten für OMO zur Verfügung stehen. Damit zeigen die Daten im Folgenden keine trockenen Mischungsverhältnisse für  $CO$  und  $CH_4$ . In der oberen Troposphäre ist der Wassergehalt sehr gering, sodass der Unterschied zwischen trockenen und gemessenen Mischungsverhältnissen ebenfalls gering ist und im Promillebereich liegt. Darüber hinaus liegt der Fokus der Arbeit auf der oberen Troposphäre, sodass Daten mit ähnlichen Wassergehalten miteinander verglichen werden.

### 2.1.5. Qualität der Messung von $CO$ , $CH_4$ und $HCHO$

Die Qualität der Daten hängt zum einen von der Drift und der Präzision ab, zum anderen von den Unsicherheiten, welche sich bei der Bestimmung der Konzentrationen für die Kalibrationsgase ergeben.

Die Drift der Daten während eines Fluges hat verschiedene Ursachen, wie Lageänderungen des Flugzeuges, Temperatur- und Druckschwankungen in der Kabine oder andere Parameter des TRISTAR. Durch regelmäßige Kalibrationen von  $CO$  und  $CH_4$  wird der Drift entgegengewirkt, indem zwischen zwei Kalibrationen interpoliert wird. Somit wird die Drift für  $CO$  und  $CH_4$  als vernachlässigbar angesehen.

Neben der Driftkorrektur kann mit den Kalibrationen die Präzision bestimmt werden. Sie ist ein statistischer Fehler, welcher sich aus dem Rauschen der Kalibrationen ergibt. Sie berechnet sich aus dem Mittelwert über die Standardabweichungen einzelner Kalibrationen in Bezug auf die erste Kalibration eines Fluges und wird für jeden Flug einzeln bestimmt.

Für die Kalibrationen von  $CO$  und  $CH_4$  wurden, wie schon erwähnt, Druckluftflaschen verwendet. Sie wurden vor der Flugzeugkampagne in Mainz mit Außenluft auf ca. 300 bar aufgedrückt und wurden nach OMO im Labor gegen Referenzgase vermessen. Für die Bestimmung der  $CO$ -Konzentrationen in den einzelnen Druckluftflaschen sind diese mit einem Raumtemperatur-TDL (engl. *Tunable Diode Laser*) gegen das Referenzgas  $SM001$  ( $121.44 \pm 1.46$  ppbv) vermessen worden. Dieses wurde wiederum gegen den Sekundärstandard  $SM007$  ( $155.8 \pm 0.45$  ppbv) mit einem

CO-Monitor (Model AL5002, Aero-Laser, Garmisch-Partenkirchen, Deutschland, Gerbig et al. (1999)) vermessen. 2007 wurde der Sekundärstandard gegen ein Verdünnungsgas ( $10 \text{ ppmv} \pm 1\%$ ) von EMPA (Eidgenössische Materialprüfungs- und Forschungsanstalt, St. Gallen/Schweiz) vermessen mit Bezug auf ein NIST Eichgas (National Institute of Standards and Technology, USA). Für den Sekundärstandard *SM007* wurden keine eventuellen Driften ab 2007 berücksichtigt, da diese nicht bekannt sind. Die  $CH_4$ -Konzentrationen in den Druckluftflaschen wurden mit einem Gaschromatographen gegen einen Arbeitsstandard (Schuck et al. (2009)), welcher auf  $1877.0 \pm 1.6 \text{ ppbv}$  kalibriert war, vermessen. Der Arbeitsstandard ist auf die Methanskala von NOAA-2004 nach Dlugokencky et al. (2005) bezogen und hat in Bezug auf den CMDL83-Standard (Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory, 1983) eine Unsicherheit von  $\pm 0.3 \frac{\text{nmol}}{\text{mol}}$ . Die einzelnen Vermessungen gegen den nächsten Standard haben Unsicherheiten. Diese ergeben in der Summe den systematischen Fehler.

Der Gesamtfehler für *CO*, bzw.  $CH_4$  setzt sich unter der Annahme der Gauß'schen Fehlerfortpflanzung aus dem statistischen und dem systematischen Fehler zusammen zu (2.2).

$$\sigma_{Gauss} = \sqrt{(\text{statistischer Fehler})^2 + \Sigma(\text{systematischer Fehler})^2} \quad (2.2)$$

Damit ergibt sich ein Gesamtfehler für *CO* von 5.14% und für  $CH_4$  von 0.275% während OMO.

Die *HCHO*-Messungen sind in der Messung und der Datenauswertung komplexer als *CO* und  $CH_4$ , wie in Kapitel 2.1.4 beschrieben. Das liegt an dem *HCHO*-Mischungsverhältnis, welches in der oberen Troposphäre im Bereich von wenigen  $10 \text{ ppt}^1$  bis einigen  $100 \text{ ppt}$  liegt (z.B. Stickler et al. (2006), Fried et al. (2003)). Außerdem spielt auch der geringe Größenunterschied in den Spektren zwischen Hintergrund- und Außenluftmessung eine Rolle, welcher die Datenauswertung erschwert. Für OMO wurde ein Detektionslimit von  $30 \text{ ppt}$  für *HCHO* bestimmt und während der gesamten Messkampagne liegen die *HCHO*-Mischungsverhältnisse unterhalb des Detektionslimits, sodass diese nicht weiter interpretiert werden können. Daher wird im Folgenden nur *CO* und  $CH_4$  betrachtet.

---

<sup>1</sup>ppt: parts per trillion ( $1 \text{ ppt} = 1 \times 10^{-12}$ )

## 2.2. EMAC-Modell

Für den Vergleich der in situ-Daten mit einem Modell wurde eine Simulation des Erdsystemmodells ECHAM/MESSy Atmospheric Chemistry model (EMAC) verwendet. Das Modell setzt sich aus einem globalen Zirkulationsmodell (engl. *general circulation model* (GCM)) und prozessbasierenden Submodellen zusammen. Das globale Zirkulationsmodell ECHAM5 (5. Generation des European Center Hamburg) wurde am Max-Planck-Institut für Meteorologie in Hamburg entwickelt und baut auf einem ECMWF (European Centre for Medium Range Weather Forecast)-Wettervorhersagemodell auf, welches in ein Klimamodell umgewandelt wurde (Roeckner et al. (2003)). Die Dynamik und Thermodynamik wird durch die Lösung der allgemeinen Gleichungen der atmosphärischen Dynamik simuliert. Das Modell hat eine horizontale Auflösung von  $2.8^\circ \times 2.8^\circ$  und eine vertikale Auflösung von 90 Schichten von der Oberfläche bis zu einer Höhe von 0.01 hPa (T42L90MA). Die Submodelle werden mit Hilfe des Modular Earth Submodel System (MESSy) an ECHAM5 gekoppelt. MESSy wurde entwickelt, um ein umfassendes Erdsystemmodell aufzubauen (Jöckel et al. (2005)). Mit diesem können verschiedene Rückkopplungsmechanismen zwischen bio-geo-chemischen Prozessen untersucht werden. Mit dem atmosphärisch-chemischen GCM wurden für diese Arbeit chemische Prozesse der Atmosphäre simuliert. Die verwendeten Emissionen setzen sich aus mehreren Emissionsquellen zusammen. Die sogenannten „*Representative Concentration Pathways*“ (RCP) sind Emissionszenarien, welche für den fünften IPCC (Intergovernmental Panel for Climate Change) Sachstandsbericht von unabhängigen Modellierungsgruppen entwickelt wurden. Die Szenarien werden nach ihrem Strahlungsantrieb, welcher durch anthropogene Aktivität verursacht wird, unterschieden. Es gibt vier verschiedene Szenarien mit einer atmosphärischen Strahlung von  $2.6 \text{ W/m}^2$ ,  $4.5 \text{ W/m}^2$ ,  $6.0 \text{ W/m}^2$  und  $8.5 \text{ W/m}^2$  für das Jahr 2100 (Van Vuuren et al. (2011)). In der hier betrachteten EMAC-Simulation wurde der RCP 8.5 verwendet. Die „*Global Fire Emissions Database*“ (GFED) ist für Feueremissionen (van der Werf et al. (2010)) und EDGAR2.0 (Emission Database for Global Atmospheric Research) für die Emissionen von Biotreibstoffverbrennungen (Olivier et al. (2002)) in die Simulation mit eingegangen. Für Methan wurden zusätzliche Quellen aus Feuchtgebieten im Amazonas und aus Bohrungen nach Schiefergas in Nordamerika in den Emissionen berücksichtigt, um den Methan-Trend seit 2007 zu simulieren (mündliche Kommunikation mit Andrea Pozzer). Für die Vergleiche mit in situ-Daten stehen zwei verschiedene Datenformate aus der EMAC-Simulation zur Verfügung, welche durch unterschiedliches Abspeichern erzeugt werden und im Folgenden eingeführt werden.

### 2.2.1. Daten entlang der Flugrouten

Das SD4-Format wurde speziell für die Simulation entlang von sich bewegenden Plattformen, wie Flugzeugen, Schiffen oder Zügen, entwickelt (Jöckel et al. (2010)). Die Datensammlung findet im Vierdimensionalen statt, indem die Modelldaten entlang der Bewegung der Plattform räumlich und zeitlich interpoliert werden. Dies wird bereits online durchgeführt, also während der Simulation, um Informationsverluste zu minimieren. Diese können auftauchen, wenn Daten erst nach der Simulation zwischen einzelnen Gitterpunkten interpoliert werden. Der Modelloutput setzt sich unter anderem aus  $CO$ - und  $CH_4$ -Daten zusammen. Der Output hat eine zeitliche Auflösung von ca. 12 min.

Für alle in dieser Arbeit dargestellten Vergleiche von Modell- mit in situ-Daten entlang der Flugrouten werde die SD4-Daten verwendet. Auf Grund ihres Zeitintervalls von 12 min kann es zu Datenlücken entlang der Flugrouten kommen. Dies ist insbesondere der Fall bei Profilen, da diese hauptsächlich aus Starts und Landungen stammen und somit nur ein begrenztes Zeitintervall in Anspruch nehmen. Dies führt dazu, dass ein EMAC-Profil nur aus wenigen Datenpunkten besteht und zum Teil kein vollständiges Profil darstellt.

### 2.2.2. 3D-Daten für Spurengase und Meteorologie

Für den zweiten Vergleich mit Modelldaten steht ein Format mit dreidimensionalen Daten aus Tagesmitteln zur Verfügung. Es gibt verschiedene Parameter, wie die Mischungsverhältnisse von  $CO$  und  $CH_4$ , die potenzielle Temperatur, die relative Vortizität (engl. *relative Vorticity*), die Windrichtung und -geschwindigkeit. Für einen Vergleich wurden horizontale Verteilungen der Parameter in verschiedenen Druckhöhen verwendet. Sie eignen sich, um die Lage der AMA in der oberen Troposphäre zu analysieren. Außerdem geben die Verteilungen Auskunft über die Mischungsverhältnisse an der Oberfläche, um so auf Emissionsquellen schließen zu können. Außerdem werden Vertikalschnitte entlang von Längen- und Breitengraden verwendet, um die vertikale Struktur und Ausdehnung der Antizyklone, sowie den Vertikaltransport von Spurengasen untersuchen zu können.

## 2.3. Trajektorienmodell FLEXPART

### 2.3.1. Grundlage

Für die Bestimmung der Herkunft und der Transportwege von Luftmassen sind Trajektorien geeignet. In dieser Arbeit wurde das Lagrange'sche Partikeldispersionsmodell (LPDM) FLEXPART mit der Version 9.2 beta (Stand: 14.06.2013) verwendet. Es wurde 1998 zunächst für den Ferntransport und die Ausbreitung von Schadstoffen entwickelt (Stohl et al. (1998)). Dafür wurde großteils die Handhabung der Eingangsdaten aus dem kinematischen Trajektorienmodell FLEXTRA übernommen (Stohl et al. (1999)). In der Lagrange'schen Betrachtung werden Trajektorien als der Weg eines infinitesimal kleinen Luftpaketes im dreidimensionalen Raum und der Zeit beschrieben (Dutton (2002)). Mathematisch wird die Trajektorie durch die differentielle Trajektoriengleichung (2.3)

$$\frac{dX}{dt} = v[X(t)] \quad (2.3)$$

beschrieben, mit der Zeit  $t$ , dem Positionsvektor  $X$  und dem Windgeschwindigkeitsvektor  $v$  (Stohl (1998)). Für bekannte Anfangsbedingungen von Position  $X_0$  und Zeit  $t_0$  kann die Trajektoriengleichung eindeutig gelöst werden. Bei meteorologischen Anwendungen mit komplexen Strömungsmustern kann Gleichung 2.3 nicht mehr analytisch gelöst werden. Daher wird eine numerische Lösung herangezogen. Das „*zero acceleration*“-Schema beschreibt die erste Näherung der Gleichung 2.3 und wird in FLEXPART verwendet (2.4, Stohl (1998)):

$$X(t + \Delta t) = X(t) + v(X, t)\Delta t \quad (2.4)$$

mit dem Windvektor  $v = \bar{v} + v_t + v_m$ , welcher sich aus der mittleren Windgeschwindigkeit  $\bar{v}$ , der turbulenten Windfluktuation  $v_t$  und der mesoskaligen Windfluktuation  $v_m$  zusammensetzt (Stohl et al. (2010)). Die erste Iteration des Schemas von Petterssen (1940) wird auf den mittleren Wind angewendet, um die Position der „*zero acceleration*“ zu korrigieren und damit die numerische Genauigkeit zu verbessern.

Neben dem Windfeld bestimmen noch weitere Faktoren die Bewegung einer Trajektorie in Raum und Zeit. Zu diesen Faktoren gehört unter anderem die planetare Grenzschicht, welche nach dem Konzept von Vogelesang and Holtslag (1996) berechnet wird und die kritische Richardson-Zahl verwendet (Stohl et al. (2010)). Außerdem kann in FLEXPART konvektiver Transport berücksichtigt werden. Hierfür gibt es die Konvektionsparametrisierung von Emanuel and Živković-Rothman (1999). In diesem Schema werden die Wolkenmikrophysik, die Physik der Luftpaketeinstromung, die



Vermischung und die großskalige Kontrolle über die gesamte Konvektionsaktivität realistisch dargestellt. Darüber hinaus wird die Wechselbeziehung zwischen konvektiven Abwinden und Oberflächenflüssen berücksichtigt.

### 2.3.2. Eingangsdaten und Einstellungen

Als antreibende meteorologische Datenfelder für FLEXPART werden in dieser Arbeit operationelle ECMWF-Daten verwendet. Diese bestehen sowohl aus dreidimensionalen Feldern wie Windkomponenten, Temperatur und spezifische Feuchte, als auch aus zweidimensionalen Feldern wie Druck, Temperatur, Windgeschwindigkeit, Schubspannung, fühlbarer Wärmestrom am Boden und einer subskaligen Standardabweichung der Topographie (Stohl et al. (1999)). Für die Berechnung von Trajektorien im Zusammenhang mit der Dynamik des indischen Sommermonsuns werden globale Daten mit einer horizontalen Auflösung von  $1^\circ \times 1^\circ$  und einer vertikalen Auflösung, bestehend aus 137 Level zwischen 1013.25 hPa und 0.01 hPa, verwendet. Die zeitliche Auflösung sind 3 h, wobei 0, 6, 12, 18 UTC Analysedaten sind und 3, 9, 15, 21 UTC Kurzzeitvorhersagen sind, ausgehend von den Analysen um 0 UTC und 12 UTC.

Neben den Eingangsdaten sind verschiedene Voreinstellungen vorzunehmen. Pro Flug wird eine Simulation gestartet. In der COMMAND-Datei werden für jeden Flug unter anderem die Richtung der Simulation, Start- und Endzeitpunkt festgelegt (Stohl et al. (2010)). In dieser Arbeit wurden 10 Tage-Rückwärtstrajektorien berechnet. Des Weiteren werden die Zeitintervalle für den Modelloutput und die Mittelungszeiten bestimmt, aber auch die Konvektionsparametrisierung aktiviert. Ein Beispiel für eine COMMAND-Datei mit allen Einstellungen ist in Anhang A.1 und eine ausführliche Beschreibung in Stohl et al. (2010) zu finden.

Die einzelnen Startvolumina für die Simulationen pro Flug, sogenannte „*Release points*“, werden in der RELEASES-Datei bestimmt (siehe Anhang A.2 und näher in Stohl et al. (2010) beschrieben). Zunächst wird die Anzahl der zu berechnenden Spezies und ihre Art (z.B. Lufttracer, *CO*, Partikel, etc.) angegeben. In dieser Arbeit werden nur Lufttracer, sprich inerte Luftpakete betrachtet. Somit unterliegen sie keinen Verlustprozessen (z.B. nasse und trockene Deposition, Reaktion mit *OH* und radioaktiver Zerfall), wie andere chemische Substanzen oder Partikel.

Für OMO wurden die *Release points* entlang der Flugrouten festgelegt. Ihre Positionen wurden mit 10 min-Mitteln der Positionsdaten von HALO entlang der Flugrouten bestimmt. Die horizontale Position wurde in eine ganzzahlige  $1^\circ \times 1^\circ$  Gitterzelle gesetzt (z.B. Längengrad  $32 - 33^\circ$  E und Breitengrad  $34 - 35^\circ$  N), die Position der Höhe bestimmte die jeweilige 500 m-Schicht in welcher der *Release point* war (z.B.

2500 – 3000 m) und der Zeitpunkt wurde in eine voll Stunde für den Start ausgedehnt (z.B. von 5 – 6 UTC), wie im Beispiel A.2 im Anhang. Des Weiteren werden in der RELEASES-Datei die Anzahl der Partikel im Startvolumen auf 10000 Luftpakete festgelegt, die Gesamtmasse wird auf 1 und die Art der Höhenangabe auf Meter über dem Meeresspiegel gesetzt. Für jeden Flug gibt es eine Datei mit den jeweiligen *Release points*.

### 2.3.3. Datenausgabe

Die Ausgabefelder von FLEXPART sind vierdimensionale Felder, sogenannte Dispersionsfelder. Sie enthalten für jedes einzelne Partikel in 3 h-Intervallen folgende Informationen: geographische Lage, planetare Grenzschichthöhe, potenzielle Vorticity, Topographie, Temperatur, Tropopausenhöhe, spezifische Feuchte und Masse. Mit Hilfe dieser Dispersionsfelder werden die Ursprungsregionen der Luftmassen ermittelt.

Eine Methode diese große Datenmenge zu reduzieren sind Trajektoriencluster, welche in FLEXPART mit einer Clusteranalyse nach Stohl et al. (2002) berechnet werden und anschließend zur Verfügung stehen. Neben fünf Clustern gibt es eine sogenannte Schwerpunktstrajektorie pro Startvolumen, welche am ehesten mit herkömmlichen Trajektorien verglichen werden kann. Diese ist in ihrer Interpretation besser, da sie nicht auf einem einzelnen Luftpaket aufbaut, sondern ein Mittel über viele Einzeltrajektorien darstellt und so die Turbulenz mit berücksichtigt. Die Schwerpunktstrajektorien werden in dieser Arbeit verwendet, um den Luftmassentransport entlang der Flugrouten bis zehn Tage zurück zu ermitteln.

## 2.4. Satellitendaten

Neben in situ-Daten, Modelldaten und Trajektorien wurden auch Satellitendaten verwendet. Es handelt sich dabei um Daten des MODIS (*Moderate – resolution Imaging Spectroradiometer*)-Instruments auf dem Satelliten AQUA, welche von der NASA (*National Aeronautics and Space Administration*) über die Internetseite <https://ladsweb.modaps.eosdis.nasa.gov/> frei verfügbar sind. Im Speziellen wurden Level 3 MODIS *Atmosphere Daily Global Product* (MYD08D3)-Daten (Platnick (2015)) verwendet. Dieser Datensatz enthält tägliche Mittel in einer 1°x1°-Auflösung von Parametern wie aerosoloptischen Eigenschaften, optische und physikalische Wolkeneigenschaften, atmosphärischen Wasserdampf, atmosphärische Profil-

und Stabilitätsindizes und die gesamte Ozonsäule. Für die Identifizierung von Gebieten mit hochreichender Konvektion wurden tägliche Mittel des Drucks an der Wolkenobergrenze verwendet.

## 3. Messkampagne OMO

Die Flugzeugkampagne OMO (*Oxidation Mechanism Observation*) wurde mit dem deutschen Forschungsflugzeug HALO (*High Altitude and LOng range aircraft*) im Juli/August 2015 durchgeführt um die Oxidationsprozesse in der oberen Troposphäre im Zusammenhang mit dem indischen Sommermonsun zu untersuchen.

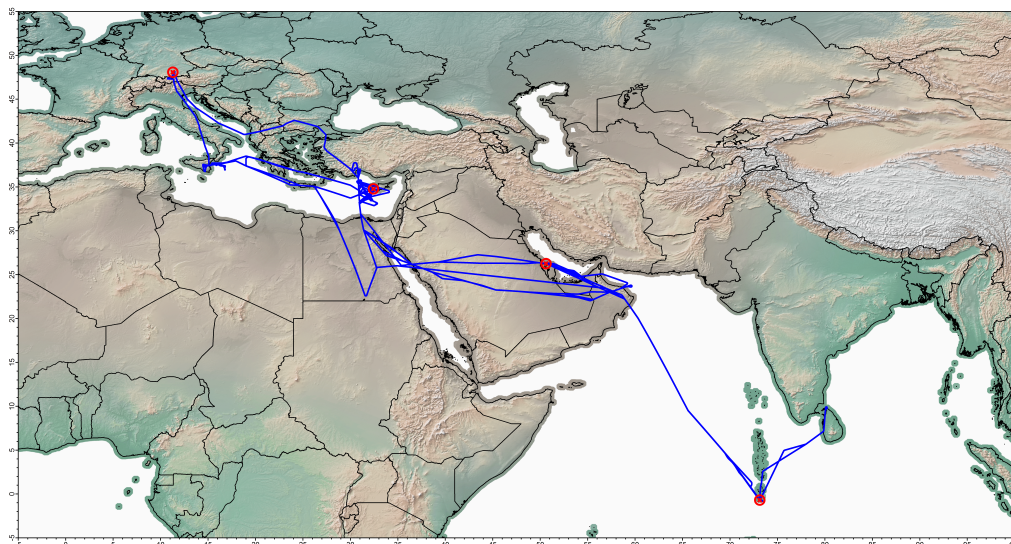


Abbildung 3.1.: Übersicht über die Flüge während OMO und die vier Flughäfen Oberpfaffenhofen (Deutschland), Paphos (Zypern), Bahrain und Gan (Malediven) (rote Kreise).

OMO ist ein gemeinschaftliches Projekt von DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt), FZJ (Forschungszentrum Jülich), MPIC (Max-Planck-Institut für Chemie), KIT (Karlsruher Institut für Technologie), sowie den Universitäten Bremen, Heidelberg und Wuppertal. Mit den 13 Messinstrumenten können verschiedene chemische Bestandteile der Atmosphäre untersucht werden, eine detaillierte Auflistung befindet sich im Anhang (Tabelle A.1).

Messflüge fanden in der oberen Troposphäre über dem Mittelmeer, der arabischen Halbinsel und dem arabischen Meer statt. Dafür gab es zwei Standorte von denen aus operiert wurde: Paphos auf Zypern und Gan auf den Malediven. Zwischen diesen Orten wurden Flüge unternommen, teilweise mit Zwischenstopps in Bahrain zum Betanken von HALO. Die Kampagne besteht aus 111 Flugstunden aufgeteilt auf 17 wissenschaftliche Flüge und drei Testflüge im Vorfeld. Eine Übersicht über

Tabelle 3.1.: Übersicht über die wissenschaftlichen Flüge während OMO.

Flug	Datum	Start	Landung	Region
8	21.07.2015	Oberpfaffenhofen	Paphos	Mittelmeer
9	25.07.2015	Paphos	Paphos	östliches Mittelmeer
10	28.07.2015	Paphos	Paphos	östliches Mittelmeer
11	01.08.2015	Paphos	Gan	arabisches Meer
12	06.08.2015	Gan	Bahrain	arabisches Meer
13	06.08.2015	Bahrain	Gan	arabisches Meer
14	08.08.2015	Gan	Gan	arabisches Meer
15	09.08.2015	Gan	Bahrain	arabisches Meer
16	09.08.2015	Bahrain	Gan	arabisches Meer
17	10.08.2015	Gan	Bahrain	arabisches Meer
18	10.08.2015	Bahrain	Paphos	arabische Halbinsel
19	13.08.2015	Paphos	Paphos	arabische Halbinsel
20	15.08.2015	Paphos	Paphos	arabische Halbinsel
21	18.08.2015	Paphos	Paphos	arabische Halbinsel
22	23.08.2015	Paphos	Paphos	östliches Mittelmeer
23	25.08.2015	Paphos	Paphos	östliches Mittelmeer
24	27.08.2015	Paphos	Oberpfaffenhofen	Mittelmeer

die Flugrouten während der Kampagne ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Die Flüge fanden überwiegend in einer Höhe von 11 – 15 km statt um Messungen in der oberen Troposphäre durchzuführen. Es gab sechs Flüge im Mittelmeerraum inklusive Höhenprofile über Ägypten, Transfer zwischen Oberpfaffenhofen (Deutschland) und Paphos, Messungen vom Hintergrund und von Monsun beeinflussten Luftmassen. Sieben Flüge fanden über dem Indischen Ozean statt, davon einer zwischen Gan und Sri Lanka und sechs über dem Arabischen Meer zwischen Gan und Bahrain. Vier Flüge fanden über der arabischen Halbinsel statt.

## 4. Ergebnisse

### 4.1. Datenanalyse für Flug 19

Zunächst wird Flug 19 mit Hilfe der in Kapitel 2 vorgestellten Mittel analysiert. Hierbei werden nur Daten oberhalb von 300 hPa gezeigt, da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der oberen Troposphäre liegt. Eine Übersicht über die einzelnen Flüge während OMO ist im Anhang A.4 zu finden.

#### 4.1.1. In situ-Messungen von $CO$ und $CH_4$

Die mit TRISTAR gemessenen Spurengase  $CO$  und  $CH_4$  variierten während OMO je nach geographischer Lage in der oberen Troposphäre. So auch in Flug 19 am 13.08.2015, bei dem HALO von Paphos aus über die Arabische Halbinsel Richtung Oman flog und wieder zurück nach Paphos (Abbildung 4.1). Während dem Flug wurden erhöhte  $CO$ - und  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse entlang der Flugroute gemessen. Zunächst waren die Werte für  $CO$  bei ungefähr 75 ppb und für  $CH_4$  bei ungefähr 1850 ppb, anschließend stiegen sie über dem Oman an und erreichten Spitzenwerte von bis zu 130 ppb ( $CO$ ) und 1960 ppb ( $CH_4$ ). Auf dem Rückflug sanken die Mischungsverhältnisse wieder auf die am Anfang gemessenen Werte. In Abbildung 4.2 ist zu erkennen, dass der sprunghafte Anstieg in den Mischungsverhältnissen gegen 10-11 UTC nicht mit einem Wechsel des Fluglevels verbunden war, sondern vielmehr erhöht blieb trotz eines Wechsels des Fluglevels von 12.6 km auf 11.7 km. Die erhöhten Mischungsverhältnisse kennzeichnen das Durchfliegen einer anderen Luftmasse in diesem Zeitraum. Diese Luftmasse hatte eine vertikale Ausdehnung, welche sich mindestens über die beiden Fluglevel erstreckte. Hierbei war der Anstieg im  $CH_4$ -Mischungsverhältnis wesentlich deutlicher als in den  $CO$ -Mischungsverhältnissen, da  $CH_4$  eine geringere natürliche Variabilität zeigte als  $CO$ , obwohl sich dieses fast verdoppelte.

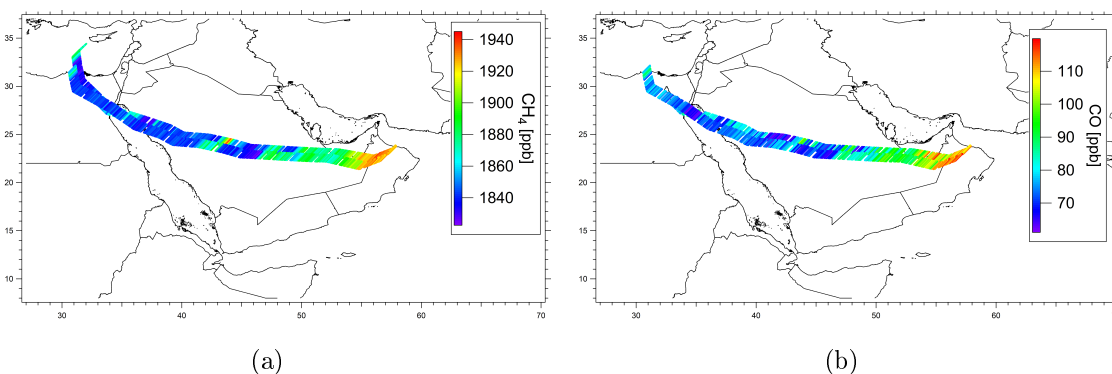


Abbildung 4.1.: Flug 19 (13.08.2015): In situ-Daten für  $CH_4$  (a) und  $CO$  (b) oberhalb 300 hPa entlang der Flugroute.

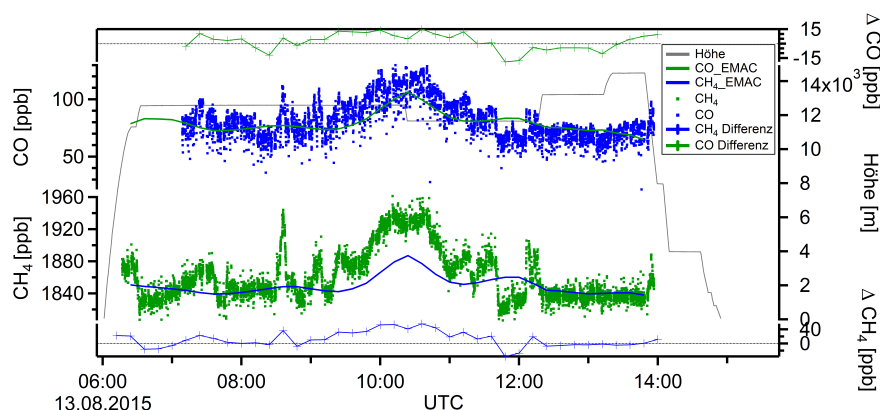


Abbildung 4.2.: Flug 19 (13.08.2015): In situ- (Punkte) und EMAC-SD4-Daten (Linien) von  $CH_4$  (unten) und  $CO$  (oben) und Abweichungen zwischen Modell und in situ-Messungen für Flughöhen über 300 hPa. Außerdem die Flughöhe (grau).

#### 4.1.2. Vergleich von Spurengasen entlang der Flugroute

In Abbildung 4.2 werden die in situ-Daten mit den EMAC-SD4-Daten für Flug 19 verglichen. Die Mischungsverhältnisse von EMAC zeigen für  $CO$  und  $CH_4$  einen ähnlichen Verlauf wie die in situ-Daten. Des Weiteren haben die simulierten Mischungsverhältnisse die gleiche Größenordnung wie die gemessenen Daten. Sie zeigen den in Kapitel 4.1.1 erwähnten Anstieg der Mischungsverhältnisse über dem Oman. Sie steigen gegen ca. 9:45 UTC zeitgleich mit den in situ-Daten an und sinken um ca. 11:00 UTC gemeinsam mit den in situ-Daten auf ihr Anfangsniveau zurück. Die Änderung in der Flughöhe ist auch in den EMAC-Daten nicht zu erkennen. Während das simulierte  $CO$  die erhöhten Mischungsverhältnisse gut reproduziert, zeigt das simulierte  $CH_4$  zwar den Anstieg, nicht aber die Maximalwerte. Diese werden von EMAC unterschätzt. Zusätzlich ist die mittlere Differenz zwischen in situ-Messwerten und Modell-Daten ( $\Delta = (in\ situ - Modell)$ ) dargestellt. Für Flug 19 ergibt sich eine Abweichung von  $2.1 \pm 8.7$  ppb für  $CO$  und  $11.9 \pm 21.7$  ppb für  $CH_4$ .

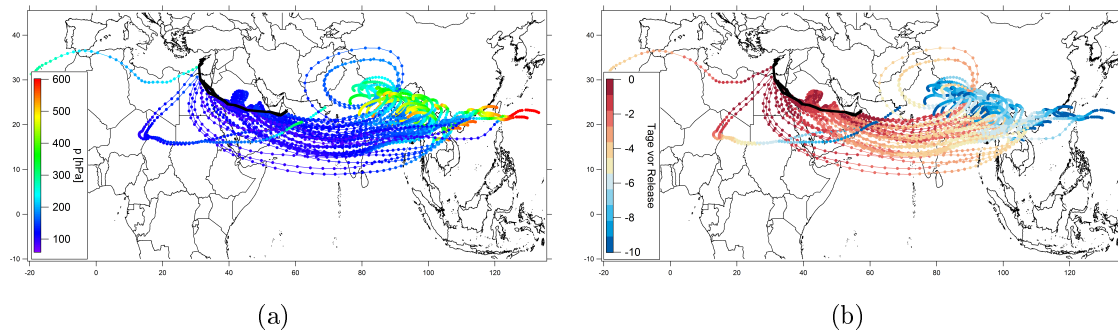


Abbildung 4.3.: Flug 19 (13.08.2015): 10 Tage-Rückwärtstrajektorien entlang der Flugroute oberhalb 300 hPa. Farbkodiert in (a) der Druck und in (b) die Zeit in Tagen vor dem Erreichen der *Release points*.

### 4.1.3. Herkunft der Luftmassen

Die oben gezeigten Verläufe in den  $CH_4$ - und  $CO$ -Mischungsverhältnissen deuten auf verschiedene Luftmassen hin. Dies wird im Folgenden mit Rückwärtstrajektorien untersucht. Hierfür werden Schwerpunktstrajektorien betrachtet, mit denen die Transportwege und die Herkunftsregionen der beprobten Luftmassen 10 Tage zurück verfolgt werden. In Abbildung 4.3(a) sind die Rückwärtstrajektorien von Flug 19 für *Release points* oberhalb von 300 hPa dargestellt. Sie haben ihren Ursprung über der Indo-Ganges-Ebene, Bangladesch und dem westlichen Pazifik. Die Trajektorien steigen entweder zunächst über den genannten Gebieten auf und werden dann Richtung Messplattform transportiert oder sie sind schon in der oberen Troposphäre und zirkulieren zum Teil in der AMA, bevor sie mittels des östlichen Jetstreams nach Westen transportiert werden. 10 – 5 Tage bevor die Trajektorien die Messregion erreichen, bewegen sie sich hauptsächlich in der unteren und freien Troposphäre bevor sie vertikal in die obere Troposphäre transportiert werden (Abbildung 4.3(b)). Diese Dauer liegt in der von Bergman et al. (2013) beschriebenen Transportdauer von 2 – 22 Tagen von der Oberfläche bis zu einer Höhe von 200 hPa in der Region der Tibetischen Hochebene und Indien/Südostasien. Im Anschluss werden die Trajektorien mit dem östlichen Jetstream Richtung Arabische Halbinsel transportiert. Dieser horizontale Transport dauert je nach Ursprungsregion ca. 1 – 6 Tage und passt damit zu den Studien von Scheeren et al. (2003) und Gottschaldt et al. (2017). In Scheeren et al. (2003) sind Transportdauern von 7 – 10 Tagen für verschmutzte Luftmassen angegeben, um von südasiatischen Quellregionen bis zum östlichen Mittelmeer zu gelangen. Für den ESMVal-Flug vom 18. September 2012 hat Gottschaldt et al. (2017) eine Transportdauer von 2 – 4 Tagen in der oberen Troposphäre von der AMA-Region bis zur Arabischen Halbinsel abgeschätzt. Außerdem können die höchsten  $CH_4$ - und  $CO$ -Werte für Flug 19 über dem Oman (Abbildung 4.1) mit Trajektorien in Verbindung gesetzt werden, die schon in der oberen Troposphäre sind und in der AMA zirkulieren, bevor sie aus der AMA in Richtung Messplatt-



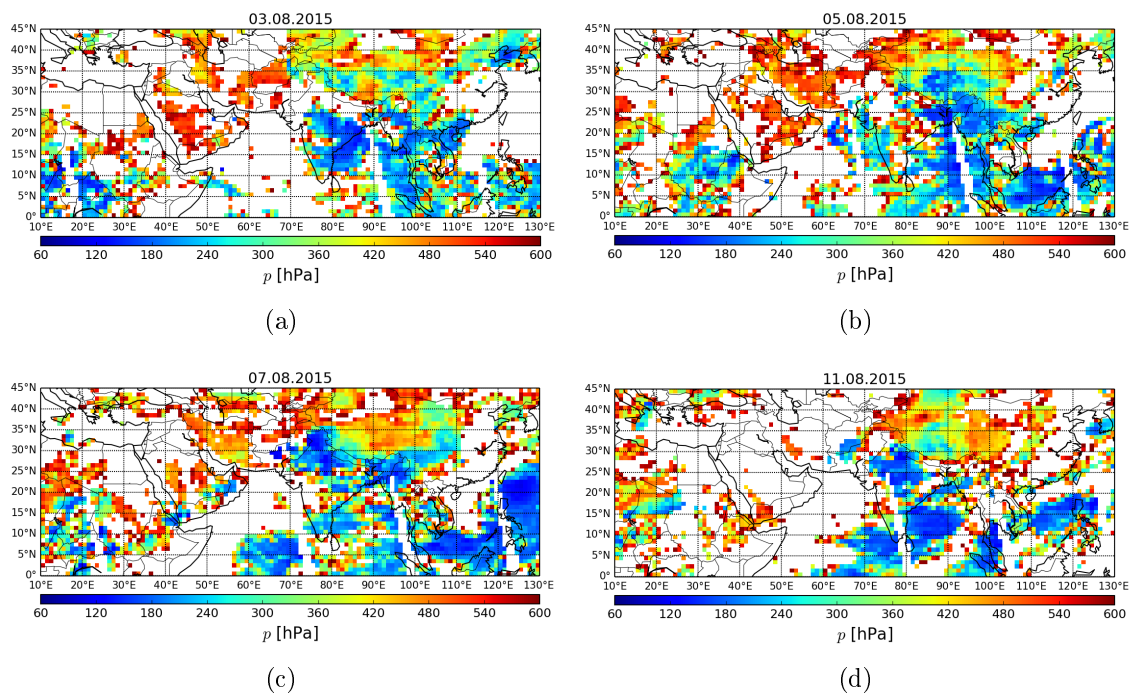


Abbildung 4.4.: Druck an der Wolkenobergrenze aus Satellitendaten zur Identifizierung von Konvektion über den Herkunftsregionen der Trajektorien für Flug 19 am 03./05./07./11.08.2015 dargestellt.

form strömen.

#### 4.1.4. Konvektion im Monsun

Für die Identifizierung von Konvektion und dem damit verbundenen Vertikaltransport von Luftmassen werden Tagesmittel vom Druck an der Wolkenobergrenze aus Satellitendaten herangezogen. Sie werden, wie in Gottschaldt et al. (2017) oder Scheeren et al. (2003), mit den Trajektorien verglichen, um zu überprüfen, ob die Zugbahnen der Trajektorien von Konvektion beeinflusst werden. In Abbildung 4.4 ist die Konvektion für den 03./05./07./11.08.2015 dargestellt. In diesen Tagen zeigte sich hochreichende Konvektion über dem indischen Subkontinent, dem Golf von Bengalen, Bangladesch, Nordost- und Nordwestindien. Die Schwerpunkte der Konvektion änderten sich dabei täglich. Die Trajektorien in Abbildung 4.3 wurden hauptsächlich von der starken Konvektion über dem Golf von Bengalen, der Indo-Ganges-Ebene, Bangladesch, Nordostindien und Myanmar ca. 10 – 6 Tage vor ihrer Ankunft in der Messregion beeinflusst, da sie unterhalb der Wolkenobergrenze verliefen und so durch die Vertikalbewegung beeinflusst wurden. Die Zugbahnen der Trajektorien zogen über Indien, wo hochreichende Wolken ebenfalls auf Konvektion hinwies. Während der Überquerung von Indien war die Konvektion im Hinblick auf ihren Einfluss auf die Trajektorien allerdings zu vernachlässigen. So zeigte sich am

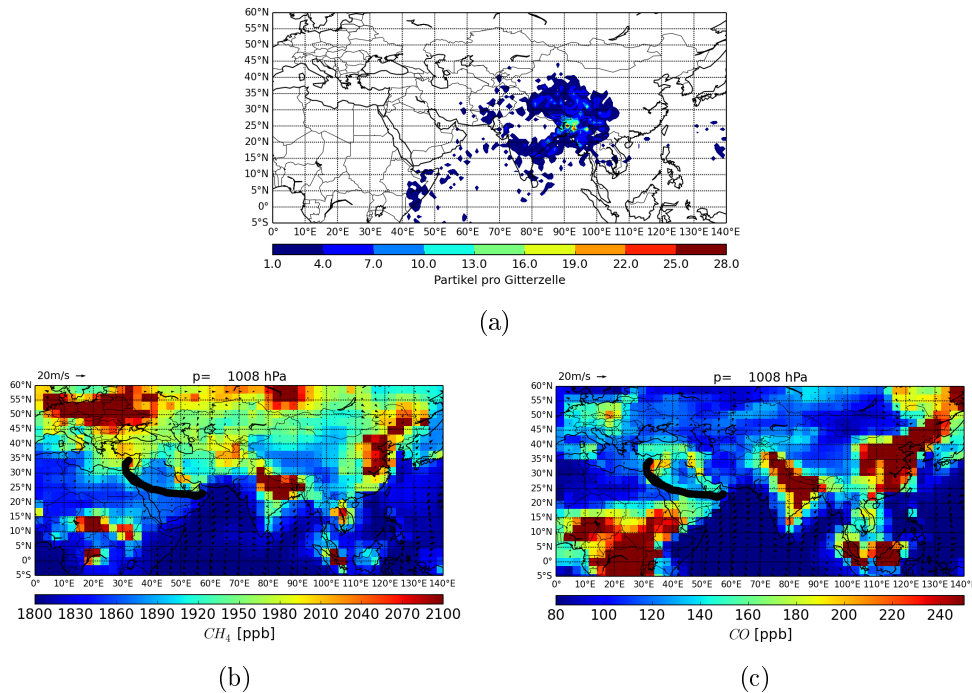


Abbildung 4.5.: Emissionsquellen für Flug 19 (13.08.2015): (a) *Footprint* des letzten PBL-Kontakts 10 Tage vor dem Flug und EMAC-Tagesmittel für  $CH_4$  (b) und  $CO$  (c) auf 1008 hPa am 03.08.2015. In schwarz die Flugroute von Flug 19 in (b,c).

11.08.2015 hochreichende Bewölkung über Indien (Abbildung 4.4(d)), aber zu diesem Zeitpunkt (ca. 2 Tage vor dem *Release*) befanden sich die meisten Trajektorien schon über dem arabischen Meer. Die für Flug 19 identifizierten Regionen für starke Konvektion decken sich mit den angegebenen Regionen von Indien und dem Golf von Bengalen in Scheeren et al. (2003).

#### 4.1.5. Emissionsquellen

Die Quellregionen der Emissionen werden mit einer Kombination aus FLEXPART Dispersionsfeldern und EMAC-Tagesmitteln für  $CO$  und  $CH_4$  bestimmt. Hierzu wird der letzte Kontakt mit der planetaren Grenzschicht (PBL) für die *Release points* mit Monsuneinfluss anhand von erhöhten  $CH_4$ -Mischungsverhältnissen (siehe Kapitel 4.2) ermittelt. Der letzte PBL-Kontakt der Partikel wird hier definiert als die PBL-Höhe  $\pm 5\%$ , welche von FLEXPART ausgegeben wird. Die Partikel werden nach ihrer geographischen Lage sortiert und in Gitterzellen ( $1^\circ \times 1^\circ$ ) aufsummiert, sodass sich eine Partikeldichte ergibt, die als sogenannter „*Footprint*“ in Abbildung 4.5(a) dargestellt ist. Für Flug 19 ist der letzte PBL-Kontakt ca. 10 Tage vor der Messung, also am 03.08.2015. Die höchsten Werte sind über Bangladesch und Nordostindien. Es wird angenommen, dass der letzte PBL-Kontakt einen guten Hinweis

auf die Position gibt, an welcher die Partikel konvektiv nach oben transportiert werden. Um die Emissionsquellen zu identifizieren, werden EMAC-Tagesmittel für  $CO$  und  $CH_4$  auf einem Drucklevel von 1008 hPa am 03.08.2015 herangezogen. Dabei wird angenommen, dass die Druckhöhe der Oberfläche entspricht.  $CH_4$  hat die höchsten Mischungsverhältnisse über der Indo-Ganges-Ebene und Bangladesch, von dort dehnt sich das Gebiet mit erhöhtem  $CH_4$  nach Süden entlang der indischen Ostküste und Richtung Myanmar aus (Abbildung 4.5(b)). Die Spitzenwerte erreichen dabei Werte bis zu 2600 ppb. Die höchsten Mischungsverhältnisse von  $CO$  (Abbildung 4.5(c)) liegen in denselben Gebieten wie von  $CH_4$  und steigen bis 400 ppb an. Der Vergleich mit Abbildung 4.5(a) zeigt, dass die Emissionsquellen mit den Gebieten des letzten PBL-Kontakts überlappen, sodass die verschmutzten Luftmassen von dort in die obere Troposphäre transportiert werden können. Park et al. (2009) identifizierten Indien und Südostasien als die Hauptursprungsregionen für  $CO$  in der oberen Troposphäre, welche die hier identifizierten Regionen mit einschließt. Eine Übereinstimmung der Quellregionen gibt es auch zu Pan et al. (2016), welche als bevorzugte Gebiete für vertikalen  $CO$ -Transport Nordostindien, den südlichen Rand der Tibetischen Hochebene, Nepal und den nördlichen Golf von Bengalen aufzählen. Rauthe-Schöch et al. (2016) haben ebenfalls mit FLEXPART 10 Tage Rückwärtstrajektorien verwendet, um die Quellregionen für Flugrouten in einem Bereich nordöstlich von Flug 19 zu bestimmen. Diese Quellregionen erstrecken sich vom westlichen Arabischen Meer über Indien, die Indo-Ganges-Ebene und den Golf von Bengalen bis zum Festland von Südostasien. Das Einzugsgebiet ist größer, da sie Daten bis zu einer Höhe von 5 km verwendeten und die Flugrouten sich innerhalb der Antizyklone befanden. Der *Footprint* von Flug 19 weist auch geringe Einflüsse von der Ostküste Afrikas, dem Indischen Ozean und dem Pazifik auf. Diese decken sich allerdings nicht mit erhöhten Mischungsverhältnissen in den EMAC-Tagesmitteln, sodass diese nicht als Emissionsquellen für die obere Troposphäre fungieren. Die EMAC-Tagesmittel weisen hohe Mischungsverhältnisse über der Ostküste von China auf, welche allerdings nicht mit den Regionen des letzten PBL-Kontakts übereinstimmen. Folglich fließen diese nicht mit in die AMA ein. Diese Vermutung wird von Bergman et al. (2013) bestätigt. Sie konnten zeigen, dass Trajektorien aus Ostchina nur selten in der Antizyklone auf einer Höhe von 200 hPa enden.

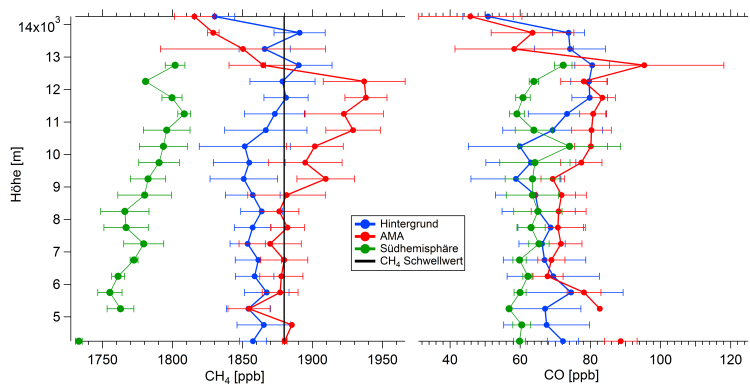
Die hohen Mischungsverhältnisse an der Oberfläche für  $CO$  und  $CH_4$  können mit unterschiedlichen Emissionsquellen erklärt werden. Die schon hohe Bevölkerungsdichte in der Region um die Indo-Ganges-Ebene und Bangladesch hat einen ansteigenden Trend und zusätzlich findet eine starke wirtschaftliche Entwicklung statt (Rauthe-Schöch et al. (2016), Ohara et al. (2007)). Dies hat zur Folge, dass die Emissionen weiter ansteigen und die Luftverschmutzung zunimmt. Die Quellen für  $CO$  sind Verbrennung von Biomasse und fossilen Brennstoffen, Verbrennungsprozesse in privaten Haushalten, aber auch Meere, Vegetation und die Oxidation von

$CH_4$  und flüchtigen Kohlenwasserstoffen (Pandis and Seinfeld (2006)).  $CH_4$ -Quellen sind Reisanbau, Feuchtgebiete, wiederkäuende Nutztiere, Verbrennung von Biomasse und fossilen Brennstoffen, sowie die Zersetzung von Abfall (Khalil (2000)). Außerdem spielen Überflutungsgebiete eine Rolle, besonders wenn sie durch Müll und Abwasser verschmutzt sind (Baker et al. (2012)). Die Überflutungsgebiete entstehen während des Monsuns durch den starken Regen und sind so besonders wichtige  $CH_4$ -Quellen, ebenso wie Reis, der seine Hauptvegetationszeit im Monsun hat und somit maßgeblich zur  $CH_4$ -Emission beiträgt (Baker et al. (2012)). Das zeitgleiche Auftreten der maximalen Methanemission und der starken Konvektion führt zu den hohen  $CH_4$ -Mischungsverhältnissen in der Antizyklone, wie sie für Flug 19 gezeigt wurden.

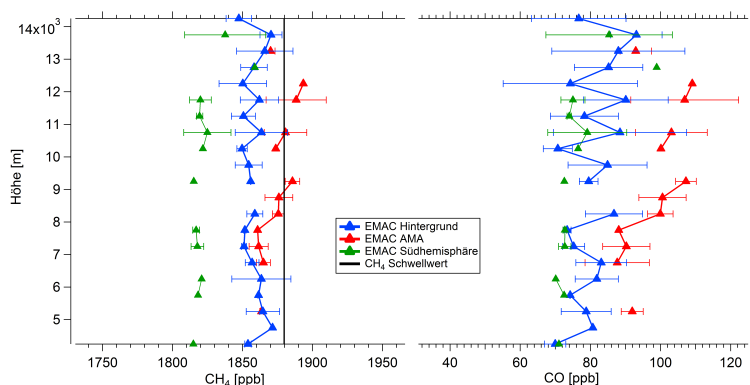
## 4.2. Profile und Methanschwellwert

Neben den horizontalen Spurengasverteilungen entlang der Flugrouten in der oberen Troposphäre zeigten auch Profile während OMO je nach geographischer Lage verschiedene Verhalten. Ähnliche Profile wurden zusammengefasst und über 500 m-Intervalle gemittelt, dabei wurden nur Daten oberhalb von 4 km betrachtet, da Messungen in der PBL in dieser Arbeit nicht diskutiert werden. In Abbildung 4.6(a) sind die in situ-Profile für  $CO$  und  $CH_4$  dargestellt, in Abbildung 4.6(b) die dazugehörigen EMAC-Profile. Die Profile können in drei geographische Lagen unterteilt werden: Hintergrund, Asiatische Monsun Antizyklone (AMA) und Südhemisphäre.

Das Hintergrundprofil setzt sich aus Profilen über Oberpfaffenhofen, Paphos und dem Ätna zusammen. Das  $CH_4$ -Profil zeigt sowohl für die Messungen, als auch für das Modell einen nahezu stabilen Verlauf über die gesamte Höhe bei einem mittleren Mischungsverhältnis von  $1863.4 \pm 14.0$  ppb für in situ-Daten und  $1858.2 \pm 7.1$  ppb für EMAC. Die gleichmäßige Verteilung von  $CH_4$  über die gesamte Höhe der Atmosphäre ist auf die lange Lebensdauer von 8 – 9 Jahren zurückzuführen (Lelieveld et al. (2016), Naik et al. (2013)). In einer Höhe zwischen 11 – 14 km steigen die in situ-Werte leicht an bis auf maximal 1890 ppb. Dieser Anstieg ist zu groß um ihn als Auswirkung auf den Wassergehalt in den  $CH_4$ -Mischungsverhältnissen zurückzuführen, da die Mischungsverhältnisse nicht als trockene Mischungsverhältnisse angegeben sind (Kapitel 2.1.4). Der Effekt durch den Wassergehalt in der Atmosphäre, welcher mit der Höhe abnimmt, bewegt sich im Promillebereich zwischen Mischungsverhältnissen in der unteren und oberen Troposphäre. Die Zunahme von  $CH_4$  in der oberen Troposphäre über dem Mittelmeer ist nicht ungewöhnlich und wurde schon in Lelieveld et al. (2002) beschrieben. Während der MINOS (*Mediterranean Intensive Oxidant Study*)-Flugzeugkampagne im Sommer 2001 wurden erhöhte



(a)



(b)

Abbildung 4.6.: Profile für Hintergrund, AMA und Südhemisphäre, zusätzlich der Methanschwellwert in schwarz in (a) für in situ-Daten und in (b) für EMAC-Daten.

$CH_4$ -Mischungsverhältnisse oberhalb von 10 km gemessen. Auf Grund von Herkunftsanalysen wurden für MINOS sowohl Asien, als auch Nordamerika als Emissionsquellen identifiziert. Der  $CH_4$ -Anstieg im Hintergrundprofil kann verschiedene meteorologische Ursachen haben. Die höheren  $CH_4$ -Werte könnten durch die AMA verursacht worden sein, allerdings konnte hier keine Abnahme der Mischungsverhältnisse in Profilen von Ost nach West beobachtet werden. Die jeweiligen Mittelwerte und Standardabweichungen der Profile für Oberpfaffenhofen, Ätna und Paphos lagen alle im gleichen Bereich. Eine weitere Erklärung könnten sogenannte „*Warm conveyor belts*“ sein. Dabei handelt es sich um Luftströme, welche innerhalb von ungefähr 2 Tagen von der planetaren Grenzschicht in die obere Troposphäre aufsteigen (Eckhardt et al. (2004)). Ihren Ursprung haben sie im Warmsektor eines Zyklons, von wo aus sie vor der Kaltfront an der Oberfläche nach oben in die obere Troposphäre aufsteigen. Neben dem meridionalen Energietransport, mittels latenter und fühlbarer Wärme, sind *Warm conveyor belts* auch für den Vertikaltransport von Wasserdampf und verschmutzten Luftmassen in die obere Troposphäre verantwortlich (Stohl et al. (2003)). In der oberen Troposphäre haben Spurengase eine längere Lebenszeit als in der PBL, sodass sie über weitere Distanzen transportiert werden können. Für erhöhte Spurengaskonzentrationen über Europa könnten unter anderem

Luftmassen mit dem Ursprung an der Ostküste Nordamerikas und dem Golf von Mexiko sorgen. Von dort werden sie über einen *Warm conveyor belt* in die obere Troposphäre geleitet und reisen über den Nordatlantik in den Extratropen bis nach Europa (Stohl and Trickl (1999)). Somit könnte das erhöhte  $CH_4$ -Mischungsverhältnis auch durch *Warm conveyor belts* beeinflusst worden sein. Außerdem könnten weitere Gebiete mit hochreichender Konvektion außerhalb der AMA eine Rolle spielen. Entlang der ITCZ könnten mittels hochreichender Konvektion (Waliser and Gauthier (1993)) verschmutzte Luftmassen in die obere Troposphäre geleitet werden. In weiteren Sommermonsungebieten könnten bodennahe verschmutzte Luftmassen mittels starker Konvektion in die obere Troposphäre transportiert werden. Hierbei werden von Fadnavis et al. (2015) sowohl der Nordamerikanische Monsun als auch der Westafrikanische Monsun als Quellen für PAN (Peroxyacetylnitrat) in der AMA beschrieben. Aus dem Nordamerikanischen Monsun könnten die Luftmassen in der oberen Troposphäre mit Westwinden Richtung Europa und weiter in die AMA strömen. Luftmassen aus dem Westafrikanischen Monsun würden zunächst in einer Höhe von 6–8 km Richtung Atlantik und Nordamerika strömen. Anschließend würden sie mit dem Westwind in der oberen Troposphäre nach Osten über Europa fließen bis in die AMA. Die hier beschriebenen Transportwege zeigen Möglichkeiten für  $CH_4$  erhöhte Mischungsverhältnisse in der oberen Troposphäre über Europa zu besitzen und könnten somit die während OMO gemessenen Profile des  $CH_4$ -Hintergrundes beeinflusst haben.

Das AMA-Profil repräsentiert die vertikale Schichtung über Ägypten und Bahrain. Im in situ- $CH_4$ -Profil ist in der oberen Troposphäre (9–12.5 km) ein deutlicher Einfluss der AMA zu erkennen, was sich auf das mittlere Mischungsverhältnis von  $1883.7 \pm 32.2$  ppb auswirkt. Die Höhe entspricht einem Drucklevel von 300–140 hPa und schließt dabei die von Randel and Park (2006) angegebene vertikale Ausdehnung der AMA von 200–100 hPa ein. Das simulierte  $CH_4$  hat in der Höhe ebenfalls höhere Werte, aber die Werte sind mit einem Mittel von  $1874.6 \pm 10.9$  ppb geringer als im in situ-Profil.

Das Profil für die Südhemisphäre besteht aus Profilen über Gan und hebt sich stark von den anderen geographischen Lagen ab. Der mittlere in situ- $CH_4$ -Wert liegt mit  $1778.3 \pm 19.5$  ppb deutlich unter den anderen Werten. Das Mischungsverhältnis nimmt mit der Höhe zu und hat selbst bei maximalen Werten geringere Mischungsverhältnisse als die Profile für den Hintergrund und die AMA. Im Modell hat das Profil der Südhemisphäre, wie schon im Hintergrund, eine gleichmäßige Verteilung über die gesamte Höhe, nur das mittlere Mischungsverhältnis ist mit  $1823.9 \pm 12.6$  ppb geringer als das der anderen Modellprofile. Die niedrigeren Mischungsverhältnisse können mit der geographischen Lage von Gan auf Höhe des Äquators erklärt werden. Im Sommer der Nordhemisphäre verschiebt sich die ITCZ nach Norden, sodass Gan von der Südhemisphäre beeinflusst wird. Da die meisten Methanquellen in

der Nordhemisphäre sind, ist dort das Mischungsverhältnis höher als in der Südhemisphäre. Der Nordsüdgradient beträgt in den in situ-Daten 85.1 ppb und passt damit gut zu dem in Bergamaschi et al. (2013) berichteten Nordsüdgradienten von 86 – 90 ppb zwischen 2007 und 2010.

Die gemessenen  $CO$ -Profile für die AMA, den Hintergrund und die Südhemisphäre stimmen innerhalb ihrer Standardabweichungen mit  $74.2 \pm 10.9$  ppb für die AMA,  $68.8 \pm 7.3$  ppb für den Hintergrund und  $63.2 \pm 4.3$  ppb für die Südhemisphäre überein. In der oberen Troposphäre zeigen die  $CO$ -Profile für den Hintergrund und die AMA geringfügig höhere Werte als in der freien Troposphäre. Die EMAC  $CO$ -Profile für die Südhemisphäre und den Hintergrund sind vergleichbar mit den in situ-Profilen, sie haben Mischungsverhältnisse von  $80.7 \pm 6.7$  ppb (Hintergrund) und  $76.7 \pm 8.1$  ppb (Südhemisphäre). Das AMA-Profil unterscheidet sich sowohl von den beiden anderen Modellprofilen, als auch vom in situ- $CO$ -Profil. Es hat ein hohes Mischungsverhältnis von  $98.1 \pm 7.7$  ppb und die Werte nehmen mit zunehmender Höhe zu. Sein Verlauf ähnelt dem vom in situ- $CH_4$ -Profil für die AMA am meisten.

Das in situ- $CH_4$  weist je nach geographischer Lage die größten Unterschiede auf, daher wird es als einfaches Mittel zur Unterscheidung zwischen Monsun beeinflussten und unbeeinflussten Luftmassen herangezogen. Dafür wird ein Methanschwellwert definiert. Er basiert auf dem Mittelwert und der Standardabweichung der Vertikalprofile des Hintergrundes, allerdings nur in einer Höhe von 4 – 10 km. Damit werden die Einflüsse der PBL mit der unteren Grenze ausgeschlossen. Monsuneinflüsse in der oberen Troposphäre werden mit der oberen Grenze ausgeschlossen. Somit geht der Anstieg im  $CH_4$ -Mischungsverhältnis oberhalb von 11 km, wie oben erwähnt, nicht in die Profilberechnung mit ein. Dies hat zu Folge, dass der Mittelwert für den Schwellwert mit  $1859.4 \pm 10.2$  ppb kleiner ist als der Hintergrundwert für die gesamte Höhe der Atmosphäre. Oberpfaffenhofen, Paphos und Ätna repräsentieren durch ihre Lagen den europäischen Hintergrund, der nicht vom Monsun beeinflusst ist. Der Methanschwellwert setzt sich wie folgt zusammen (4.1):

$$\begin{aligned} \text{Schwellwert} &= \text{Mittelwert} + 2\sigma \\ &= 1859.4 \text{ ppb} + 2 * 10.2 \text{ ppb} \\ &= 1879.8 \text{ ppb} \end{aligned} \tag{4.1}$$

$CH_4$ -Mischungsverhältnisse über dem Schwellwert werden als vom Monsun beeinflusst betrachtet. Er wird auf in situ- $CO$ , EMAC-Daten und Rückwärtstrajektorien angewendet. Im Weiteren wird zwischen Hintergrund ( $[CH_4] < 1879.8$  ppb) und AMA ( $[CH_4] \geq 1879.8$  ppb) unterschieden. In den  $CH_4$ -Profilen ist der Schwellwert eingezeichnet und verdeutlicht somit die erhöhten  $CH_4$ -Werte in der oberen Troposphäre (Abbildung 4.6). In Abbildung 4.7 ist das Histogramm für die  $CH_4$ -Profile

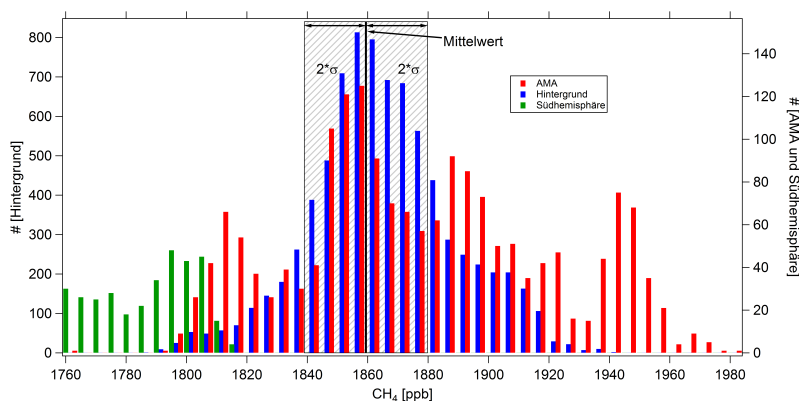


Abbildung 4.7.: In situ- $CH_4$ -Histogramm für Hintergrund, AMA und Südhemisphäre, inklusive dem Mittelwert (1859.4 ppb) für das Hintergrundprofil zwischen 4 – 10 km und der dazugehörigen zweifachen Standardabweichung ( $2 * 10.2$  ppb).

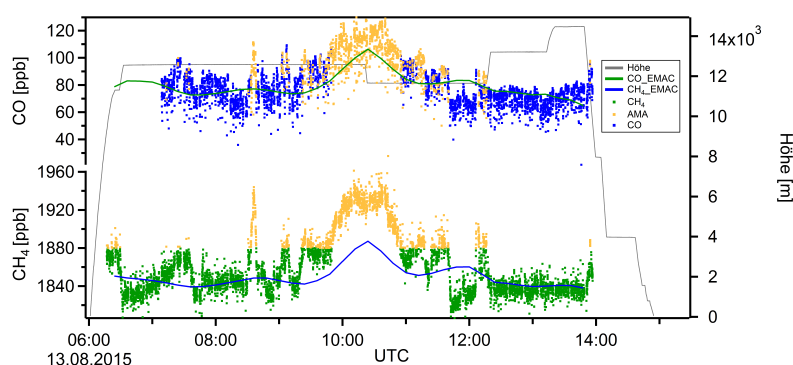


Abbildung 4.8.: Flug 19 (13.08.2015): In situ- und EMAC-SD4-Daten für  $CH_4$  (unten) und  $CO$  (oben) mit gelb markiertem AMA-Einfluss ( $[CH_4] \geq 1879.8$  ppb) für Flughöhen über 300 hPa, außerdem der Flughöhe (graue Linie).

über die gesamte Troposphäre oberhalb von 4 km unterteilt nach Hintergrund, AMA und Südhemisphäre dargestellt. Die Südhemisphäre hat nur Mischungsverhältnisse unterhalb des Mittelwertes. Die Verteilung von  $CH_4$  im Hintergrund hat die meisten Werte innerhalb des Bereiches des Mittelwertes  $\pm 2\sigma$  und außerhalb dieses Bereiches weniger Messwerte. Die Mischungsverhältnisse oberhalb des Schwellwertes können der oberen Troposphäre zugeordnet werden, wie oben diskutiert wurde. Die Mischungsverhältnisse für die Profile der AMA zeigen eine sehr breite Verteilung mit einem Mittelwert oberhalb des  $CH_4$ -Schwellwertes. Die geringeren Werte sind überwiegend aus der unteren Troposphäre und die höheren Werte überwiegend aus der oberen Troposphäre, wie in den  $CH_4$ -Profilen (Abbildung 4.6(a)) zu erkennen. Eine eindeutige Unterscheidung ist schwierig, wenn die gesamte Höhe der Atmosphäre betrachtet wird, allerdings ist der Schwellwert ein gutes Mittel um zwischen AMA und Hintergrund besonders in der oberen Troposphäre unterscheiden zu können. In Abbildung 4.8 sind die in situ-Daten für Flug 19 gemäß dem AMA-Einfluss eingefärbt. Sobald die  $CH_4$ -Werte den Schwellwert übersteigen sind die  $CO$ -Werte ebenfalls erhöht. Mittels des Schwellwertes lassen sich nun die abgeschätzten Werte aus Kapitel 4.1.1 für den Hintergrund und die AMA quantifizieren.  $CO$  hat im



Hintergrund  $74.3 \pm 10.6$  ppb und in der AMA  $99.5 \pm 14.3$  ppb und  $CH_4$  hat im Hintergrund  $1846.7 \pm 16.1$  ppb und in der AMA  $1905.2 \pm 13.9$  ppb. Somit steigt  $CO$  um ca. 25 ppb und  $CH_4$  um ca. 58 ppb durch den AMA-Einfluss an. Dieser vor allem in  $CH_4$  deutliche Unterschied bestätigt die chemische Isolierung der AMA vom Rest der oberen Troposphäre, wie schon in früheren Studien beschrieben (z.B. Park et al. (2008)). Außerdem wird durch die große Differenz in  $CH_4$  die Anwendung des Methanschwelwertes bestätigt. Des Weiteren passen die Ergebnisse von Flug 19 gut zu den in Scheeren et al. (2003) präsentierten in situ-Mischungsverhältnissen für  $CO$  und  $CH_4$  aus 6 – 13 km Höhe. Die Mischungsverhältnisse für  $CO$  waren  $74 \pm 12$  ppb für Luftmassen mit Ursprung über Nordamerika/Nordatlantik und  $102 \pm 4$  ppb mit Ursprung in Südasien.  $CH_4$  hatte Werte von  $1819.4 \pm 26$  ppb (Nordamerika/Nordatlantik) und  $1882 \pm 21$  ppb (Südasien). Die  $CH_4$ -Werte von Scheeren et al. (2003) waren geringer als die OMO-Werte, da die Studie auf Daten aus dem Sommer 2001 basiert und somit vor dem seit 2007 stattfindenden  $CH_4$ -Trend liegt (Schaefer et al. (2016)). Damit ergeben sich Differenzen für  $CO$  von 28 ppb und für  $CH_4$  von 63 ppb, welche den hier beschriebenen Differenzen zwischen Hintergrund und AMA entsprechen.

## 4.3. AMA während OMO

### 4.3.1. 3D-Verteilung der Spurengasen $CO$ und $CH_4$

Im Folgenden wird der Blick nun von einem Flug hin zu der gesamten Kampagne erweitert. Alle Flüge hatten oberhalb von 300 hPa eine durchschnittliche potentielle Temperatur von  $356.2 \pm 5.0$  K und fanden damit ausschließlich unterhalb der Tropopause statt. Die Tropopause ist in der AMA nach Ploeger et al. (2015) um ca. 20 K nach oben verschoben, also in den Tropen von 380 K auf 400 K. Ein Absinken der Tropopause hin zu den mittleren Breiten außerhalb der Monsunregion findet zwischen  $35 - 45^\circ$  N statt. In den mittleren Breiten liegt die Tropopause bei  $330 - 350$  K (Gettelman et al. (2011)). Die Flüge während OMO fanden hauptsächlich südlich von  $40^\circ$  N statt, sodass sie nicht unmittelbar von der Stratosphäre beeinflusst wurden.

Die Rückwärtstrajektorien variierten in ihren Ursprungsregionen während OMO je nach Messregion. Flüge im Mittelmeerraum waren meistens von Luftmassen aus dem Westen geprägt, mit Ursprung über dem Nordpazifik, Nordamerika, dem Nordatlantik und Europa. Flüge über der Arabischen Halbinsel wurden vor allem durch den östlichen Jetstream geprägt, welcher den Transport von Luftmassen aus einem sehr

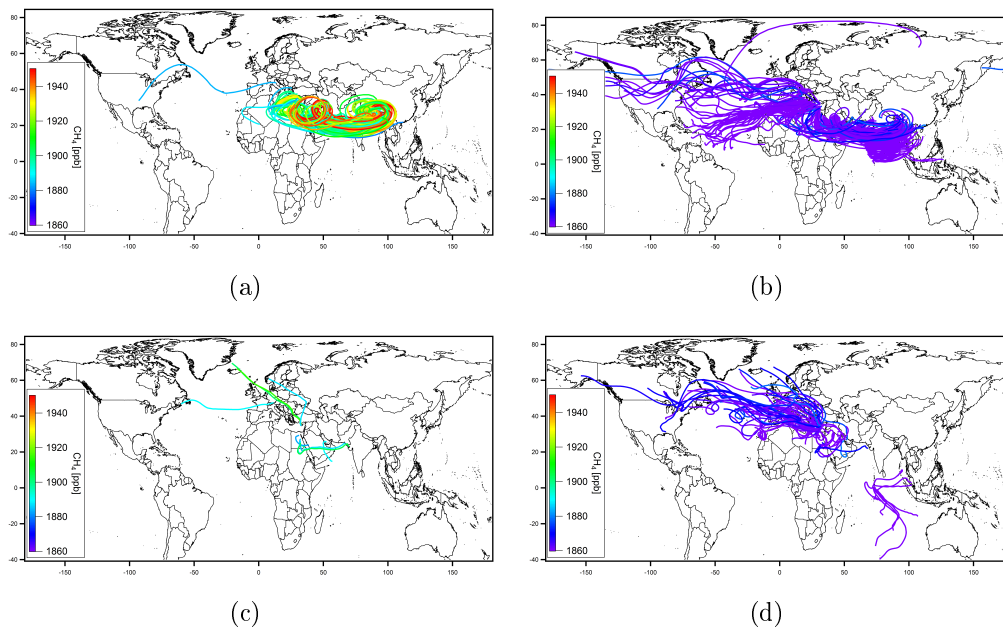


Abbildung 4.9.:  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse für die jeweilige Schwerpunktstrajektorie: in der oberen Troposphäre zwischen 9 – 15 km für (a)  $[CH_4] \geq \text{Schwellwert}$  und (b)  $[CH_4] < \text{Schwellwert}$  und in der mittleren und unteren Troposphäre zwischen 0 – 9 km für (c)  $[CH_4] \geq \text{Schwellwert}$  und (d)  $[CH_4] < \text{Schwellwert}$ .

weitläufigen Gebiet mit einer Ostwesterstreckung vom Westpazifik bis zum Arabischen Meer und einer Nordsüderstreckung von Tibet bis zur Südspitze Indiens ermöglichte. Der Luftmassenursprung war bei Flügen über dem Arabischen Meer vergleichbar mit der Herkunftsregion der Arabischen Halbinsel, wobei die südliche Erstreckung sich weiter bis zum südlichen Wendekreis ausdehnte.

Für eine Klassifizierung wird der  $CH_4$ -Schwellwert auf die 10 Tage-Rückwärtstrajektorien angewendet um eine 3D-Verteilung der Spurengase für die AMA zu erhalten. Zu diesem Zweck wurden die Trajektorien mit dem jeweiligen  $CH_4$ -Mischungsverhältnis eingefärbt und dann nach dem Methanschwellwert und der Höhe eingeteilt. Für die Höhe gibt es zwei Schichten, welche auf Grundlage des AMA- $CH_4$ -Profils aus Kapitel 4.2 gewählt wurden. Die erste Schicht ist die obere Troposphäre (9 – 15 km) und die zweite Schicht die mittlere und untere Troposphäre zwischen 0 – 9 km. Die  $CH_4$ -Werte sind 10 min-Mittel entlang der Flugrouten. In der oberen Troposphäre (Abbildung 4.9(a)) zeigen die Trajektorien mit erhöhten  $CH_4$ -Mischungsverhältnissen ein deutliches Muster, welches die starke Abgrenzung der AMA vom Hintergrund darstellt (Randel and Park (2006)). Dieses Gebiet hat eine zonale Erstreckung von 5 – 105° E und eine meridionale Erstreckung von 13 – 39° N. Für  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse unterhalb des Methanschwellwertes haben die Trajektorien in der oberen Troposphäre ein größeres Einzugsgebiet mit verschiedensten Zugbahnen und Ursprüngen (Abbildung 4.9(b)). Sie haben ihren Ursprung nicht nur in der Region der AMA, sondern auch im Nordatlantik und dem Golf von Bengalen, bzw. in Südostasien. Eine klare räumliche Trennung zwischen AMA- und

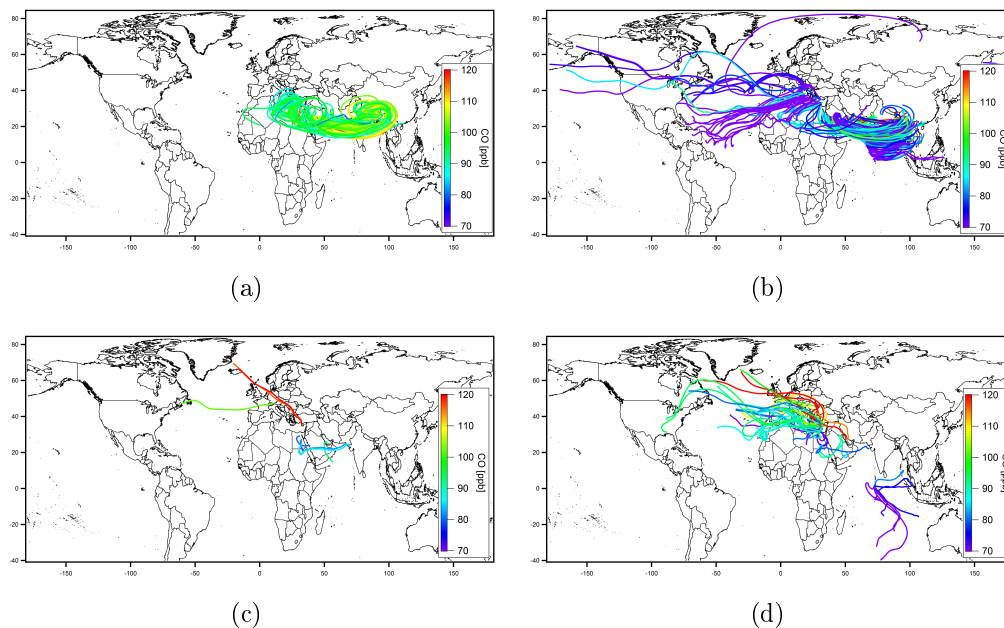


Abbildung 4.10.:  $CO$ -Mischungsverhältnisse für die jeweilige Schwerpunktstrajektorie: in der oberen Troposphäre zwischen 9 – 15 km für (a)  $[CH_4] \geq \text{Schwellwert}$  und (b)  $[CH_4] < \text{Schwellwert}$  und in der mittleren und unteren Troposphäre zwischen 0 – 9 km für (c)  $[CH_4] \geq \text{Schwellwert}$  und (d)  $[CH_4] < \text{Schwellwert}$ .

Hintergrund-Trajektorien ist für die gesamte Messkampagne nicht möglich, genauso wie ein klarer Anstieg der Mischungsverhältnisse nicht eindeutig vom Rand in Richtung des Zentrums der Antizyklone (Garny and Randel (2013)) zu erkennen ist. Beides hat zwei Ursachen. Zum einen decken die Trajektorien einen Zeitraum von sieben Wochen ab. In dieser Zeit variierte die Lage der Antizyklone, da diese von verschiedenen dynamischen Prozessen beeinflusst wird, welche in Kapitel 4.4 näher beschrieben werden, und damit variierten auch die Zugbahnen der Trajektorien. Zum anderen starteten die Trajektorien an unterschiedlichen Positionen, abhängig von der Flugroute. In der unteren Schicht (Abbildung 4.9(c,d)) scheint das  $CH_4$ -Mischungsverhältnis keine große Rolle in Bezug auf den Ursprung der Trajektorien zu spielen. Die Trajektorien stammen hauptsächlich aus der westlichen Nordhemisphäre oder von Starts und Landungen in Gan aus der Südhemisphäre. Außerdem gibt es nur wenige Trajektorien mit erhöhten  $CH_4$ -Werten, welche auf *Release points* aus Profilflügen über Ägypten, sowie aus Starts oder Landungen in Paphos oder Bahrain zurückzuführen sind.

Für  $CO$  sind die Trajektorien auch in Bezug auf den Methanschwellwert unterteilt und in Abbildung 4.10 dargestellt. Dabei ändern sich nur die Mischungsverhältnisse entlang der Trajektorien, allerdings sind die Abbildungen nicht identisch zu  $CH_4$ , da wegen Messausfällen für manche Trajektorien keine  $CO$ -Daten vorhanden sind. In der oberen Schicht für  $[CH_4] \geq \text{Schwellwert}$  liegen die  $CO$ -Mischungsverhältnisse überwiegend zwischen 90 – 110 ppb. Somit werden die höchsten Werte für  $CO$  in Bezug auf die hier angewendete Methode nicht in der AMA angezeigt. Außerhalb der

AMA ( $[CH_4] < \text{Schwellwert}$ ) nehmen die  $CO$ -Mischungsverhältnisse vom AMA-Zentrum nach außen hin ab, vor allem Richtung Süden. Dies spiegelt die Abnahme der Mischungsverhältnisse vom AMA-Zentrum zum Rand hin von Garny and Randel (2013) besser wider als  $CH_4$ . Die Werte oberhalb von ungefähr 85 ppb haben Zugbahnen, welche dem südlichen Verlauf der AMA und dem Tropenjet folgen. In der unteren Schicht sind  $CO$ -Mischungsverhältnisse über den gesamten ppb-Bereich vorzufinden. Niedrige Werte wurden vor allem im Bereich um Gan gemessen und hohe Werte sind auf Starts und Landungen in Paphos und Bahrain zurückzuführen. In der unteren Schicht weisen die Trajektorien für  $CO$  mit Ursprung über dem Nordatlantik im Vergleich zu  $CH_4$  nicht nur geringere Mischungsverhältnisse auf, sondern auch höhere Mischungsverhältnisse.

### 4.3.2. AMA-Unterscheidung in Modell- und in situ-Daten

Nach der Übersicht über die verschiedenen Herkunftsregionen mittels der Rückwärts-trajektorien, werden nun die in situ- und EMAC-Daten im Hinblick auf die gesamte Kampagne in der oberen Troposphäre zwischen 300–140 hPa untersucht. Die in situ-Daten haben Mittelwerte von  $1866.4 \pm 43.0$  ppb für  $CH_4$  und  $84.6 \pm 16.9$  ppb für  $CO$ . Mit EMAC ergaben sich  $1859.1 \pm 22.4$  ppb für  $CH_4$  und  $89.6 \pm 15.7$  ppb für  $CO$ . Die Differenz zwischen in situ- und Modelldaten ergibt sich aus:  $\Delta = in\ situ - Modell$ . Die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse von der EMAC-SD4-Simulation unterschätzten die in situ-Daten um  $7.0 \pm 32.8$  ppb und überschätzen  $CO$  mit  $-4.6 \pm 11.8$  ppb. Das  $CH_4$ -Histogramm (Abbildung 4.11(a)) zeigt drei Moden. Je nach Messregion wird  $CH_4$  unterschiedlich gut vom Modell reproduziert, wie schon in den Profilen zu erkennen war (Kapitel 4.2). Der linke Mode ist der Südhemisphäre zuzuordnen. EMAC überschätzt das Mischungsverhältnis von  $CH_4$  in der Südhemisphäre im Gegensatz zur globalen Unterschätzung. Der mittlere Mode entspricht dem Hintergrund der Nordhemisphäre, welcher am besten vom Modell wiedergegeben wird. Der rechte Mode entspricht der AMA und wird von EMAC ebenfalls unterschätzt. Die  $CO$ -Verteilung hat nur einen Mode und zeigt damit keine regionalen Unterschiede im Vergleich zu  $CH_4$ . Insgesamt werden die in situ-Messungen von EMAC trotz einer globalen Auflösung von  $2.8^\circ \times 2.8^\circ$  gut reproduziert. Im Folgenden wird die Simulation des Monsuns detaillierter mit den in situ-Messungen verglichen.

Für die nähere Untersuchung werden sowohl die gemessenen als auch die simulierten Spurengase mittels des Methanschwellwertes in der oberen Troposphäre zwischen 300–140 hPa verwendet, wobei sich die vertikale Ausdehnung auf die Profile in Kapitel 4.2 bezieht. In Tabelle 4.1 werden die gemessenen und die simulierten Daten nach Hintergrund und AMA für die gesamte Kampagne unterschieden. Zwischen AMA

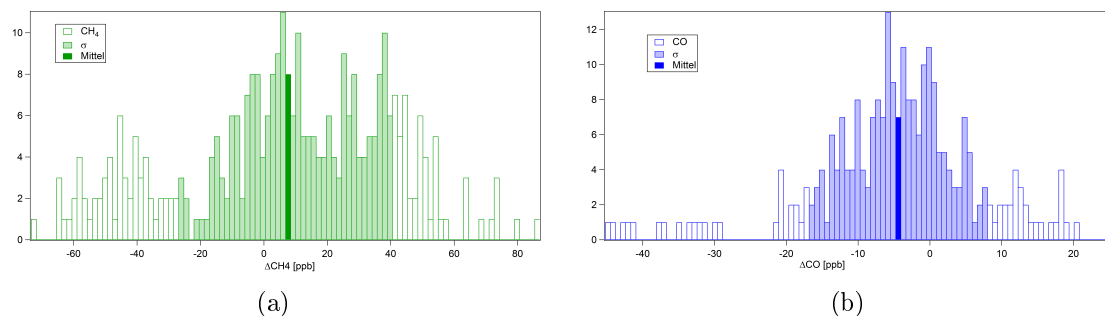


Abbildung 4.11.: Histogramme: Differenz zwischen in situ- und EMAC-SD4-Daten ( $\Delta = in\ situ - Modell$ ) von  $CH_4$  (a) und  $CO$  (b) für Flughöhen im Bereich 300 – 140 hPa.

Tabelle 4.1.: Mittelwerte für  $CH_4$  und  $CO$  für Hintergrund und AMA in einem Höhenintervall von 300 – 140 hPa über die gesamte Kampagne, jeweils in situ- und EMAC-Daten.

$p = 300 - 140$ hPa		$CH_4$ [ppb]		$CO$ [ppb]	
		Mittel	$\sigma$	Mittel	$\sigma$
AMA	in situ	1910.0	19.2	96.9	10.0
	EMAC	1874.4	15.3	99.0	11.9
Hintergrund	in situ	1837.9	27.6	76.8	15.7
	EMAC	1850.5	21.2	84.3	15.1

und Hintergrund zeigten vor allem die in situ- $CO$ - und  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse deutliche Unterschiede. Die Mischungsverhältnisse stiegen für  $CO$  um ca. 20.1 ppb und für  $CH_4$  um ca. 72.1 ppb an, wenn sie von der AMA beeinflusst wurden. Die EMAC-Daten weisen auch auf einen Anstieg in den Mischungsverhältnissen hin, wenn sie von der AMA beeinflusst sind, allerdings fällt dieser geringer aus, als in den in situ-Daten. Das  $CO$ -Mischungsverhältnis von EMAC hat eine Differenz von 14.7 ppb und  $CH_4$  eine Differenz von 24.0 ppb. Der Anstieg im in situ- $CH_4$  vom Hintergrund zu der AMA stimmt mit den Ergebnissen von Schuck et al. (2012) überein. Sie haben einen zeitlichen Methananstieg von 30 – 80 ppb zwischen vor dem Monsun und während des Monsuns in einer Höhe von 8 – 12.5 km gefunden. Xiong et al. (2009) berichteten sogar von  $CH_4$ -Erhöhungen um bis zu 100 ppb auf einem Drucklevel von 300 hPa zwischen Juni und September. Beide Studien wurden über Indien und damit näher an der AMA durchgeführt. Des Weiteren passt der während OMO gemessene Hintergrundwert für  $CH_4$  von 1837.9 ppb in der oberen Troposphäre, unter der Annahme einer gleichmäßigen vertikalen Verteilung, wie sie sich im in situ-Hintergrundprofil zeigte, gut zu dem globalen Jahresdurchschnitt von 1834 ppb (2015). Dieser bezieht sich auf Stationen in der maritimen Grenzschicht der Global Monitoring Division des NOAA (National Oceanic & Atmospheric Administration) Earth System Research Laboratory (ESRL, Dlugokencky (2017)). In Abbildung 4.12 zeigen Histogramme die Variabilität der Spurengase  $CO$  und  $CH_4$  in der AMA und im Hintergrund und ergänzen damit die oben diskutierte Tabelle (4.1). Für  $CO$  sind das Modell und die in situ-Messungen vergleichbar, sie

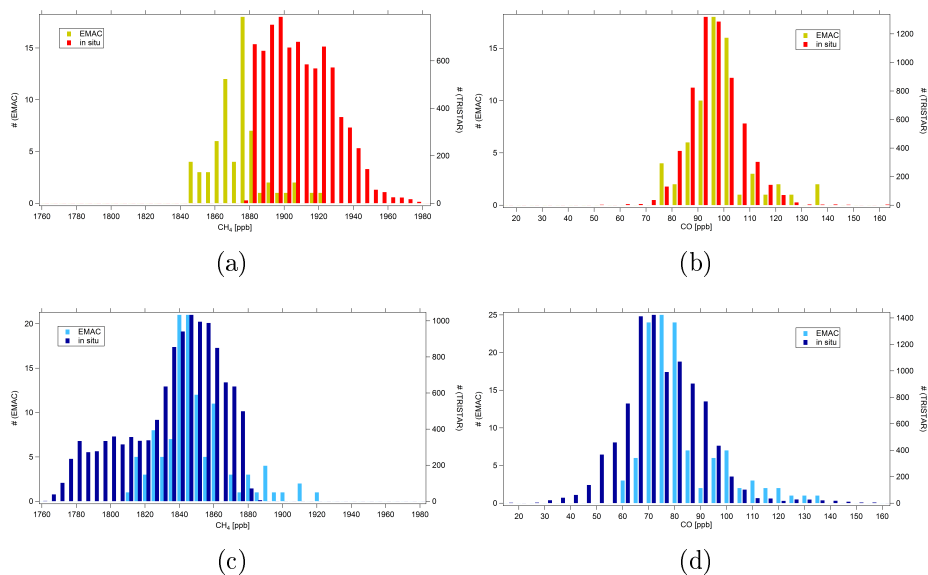


Abbildung 4.12.: Histogramme für  $CO$  und  $CH_4$  jeweils in situ- und EMAC-Daten, unterschieden nach (a,b) AMA (EMAC: gelb, in situ: rot) und (c,d) Hintergrund (EMAC: hellblau, in situ: dunkelblau) in einem Höhenintervall von 300 – 140 hPa.

zeigen sowohl für den Hintergrund, als auch für die AMA eine ähnliche Verteilung mit einem Mode (Abbildung 4.12(b), (d)). Dies spiegelt sich auch in den Mittelwerten von  $CO$  wider, welche innerhalb ihrer Standardabweichungen übereinstimmen. Die mittleren Hintergrund- und AMA-Mischungsverhältnisse für simuliertes  $CH_4$  stimmen ebenfalls unter Berücksichtigung der Standardabweichung überein (Abbildung 4.12(a), (c)). Ein anderes Bild ergibt sich für in situ- $CH_4$ , welches zwischen AMA und Hintergrund klar voneinander getrennt ist. Dies liegt zum einen an dem Methanschwellwert, welcher die beiden Regime voneinander trennt. Zum anderen zeigt das Hintergrundhistogramm eine deutliche Bimodalität (Abbildung 4.12(c)). Der Mode mit den geringeren Mischungsverhältnissen von 1760 – 1820 ppb kann der Südhemisphäre mit Flügen über dem Indischen Ozean zugeordnet werden. Der Mode mit Werten von 1820 ppb bis 1880 ppb kann der Nordhemisphäre zugeordnet werden, dort gehen vor allem Flüge über dem Mittelmeer und zum Teil über der Arabischen Halbinsel mit ein. Die breite Verteilung in  $CH_4$  unter Einfluss der AMA reicht von 1880 ppb bis 1980 ppb. Mit dem Maximalwert wird der  $CH_4$ -Anstieg um 100 ppb von Xiong et al. (2009) zwischen Hintergrund und AMA bestätigt. Diese Variabilität hat viele Ursachen. Hierbei kann der Abstand zwischen HALO und Zentrum der AMA eine Rolle spielen. Der Abstand variierte während OMO, da sich sowohl die Position der AMA verschoben hat, als auch Flüge über verschiedenen Regionen stattgefunden haben. Außerdem wirkte sich die Dynamik der AMA auf die Messungen aus, welche in Kapitel 4.4 diskutiert wird.

### 4.3.3. 3D-Betrachtung der AMA

Die Position der AMA kann mit Hilfe von horizontalen Querschnitten aus EMAC-Tagesmitteln auf einem Drucklevel von 200 hPa für jeden Flug bestimmt werden. In dieser Höhe findet nach Park et al. (2009) das meiste konvektive Ausströmen statt und es werden dort die höchsten Mischungsverhältnisse von Spurengasen erwartet. Die Lage der Antizyklone wird durch das Windfeld und die Mischungsverhältnisse von  $CO$  und  $CH_4$  beispielhaft für Flug 19 erläutert. In Abbildung 4.13 zeigen die hohen  $CO$ - und  $CH_4$ -Werte, sowie das Windfeld der Antizyklone am 13.08.2015. Die Antizyklone erstreckte sich von der Ostküste der Arabischen Halbinsel bis zum östlichen China und vom nördlichen Rand des Golf von Bengalen bis zur Wüste Gobi. Das Zentrum der Antizyklone lag dabei über der Tibetischen Hochebene und entsprach damit einer Position, die nach Zhang et al. (2002) im klimatologischen Mittel lag. Die starke Zirkulation der Antizyklone sorgte dafür, dass die erhöhten Mischungsverhältnisse der Spurengase in der Antizyklone eingeschlossen waren (Park et al. (2008)). Dazu tragen der Subtropenjet im Norden und der Tropenjet im Süden bei, da sie die AMA nach Norden und Süden hin begrenzen. Somit wirken sie als eine Transportbarriere, sodass die Ausbreitung der Spurengase nach Norden und Süden unterdrückt wird. Am 13.08.2015 ist der Wind im Subtropenjet stärker als südlich von der AMA. Dies hat zur Folge, dass der Gradient in den Spurengasen am Nordrand deutlicher ist. Der starke  $CH_4$ -Abfall zwischen AMA und Hintergrund markiert die Transportbarriere eindeutig um die gesamte AMA und damit ihre chemische Isolierung (Park et al. (2008)). Der Gradient am Nordrand der AMA wird durch die Stratosphäre in den Extratropen in ihrer horizontalen Ausdehnung begrenzt. Im klimatologischen Mittel liegt die Tropopause im Nordhemisphärensommer in einer Höhe von 11–14 km ungefähr zwischen 40–50° N und hat dabei eine potentielle Temperatur zwischen 340 – 370 K (Gettelman et al. (2011)). In diesem Höhenintervall fanden die Flüge während OMO statt und hier ist auch der meridionale  $CH_4$ -Gradient am AMA-Rand zu sehen (Abbildung 4.13(a)). Die potentielle Temperatur ist in der AMA und in höheren Breiten höher als in einem schmalen Bereich dazwischen, welcher hier als Tropopause angesehen werden kann (Abbildung 4.13(c)). Im Gegensatz dazu zeigt  $CO$  zwar auch eine Abnahme, aber mit räumlichen Unterschieden. Am Nordrand ist die Transportbarriere ausgeprägter als im Süden, da der südliche Übergang wesentlich weicher ist. Die Mischungsverhältnisse steigen in der Antizyklone vom Rand zur Mitte hin an.  $CO$  steigt dabei von 90 ppb auf 150 ppb und  $CH_4$  von 1860 ppb auf 1920 ppb an. Über dem Mittelmeer weisen  $CO$  und  $CH_4$  Hintergrundwerte von ungefähr 65 ppb und 1840 ppb auf. Die Anreicherung von Spurengasen in der AMA ist schon in früheren Studien gezeigt worden. Park et al. (2004) und Xiong et al. (2009) haben beide einen Anstieg in  $CH_4$  über der Sommermonsunregion in Satellitendaten beobachtet. Er-

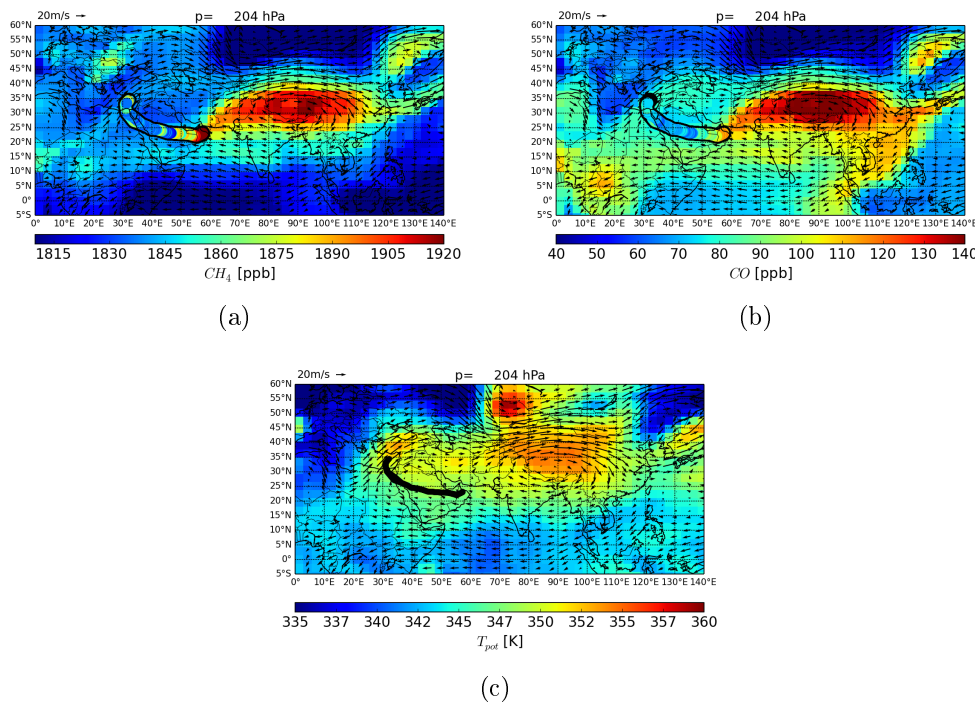


Abbildung 4.13.: Flug 19 (13.08.2015): tägliches EMAC-Mittel für (a)  $CH_4$ , (b)  $CO$  und (c) potentielle Temperatur auf einem Drucklevel von 200 hPa und die in situ-Messungen entlang des Fluges.

höhe  $CO$ -Mischungsverhältnisse über der Monsunregion wurden u.a. von Li et al. (2005) gezeigt. Sie berichteten von Mischungsverhältnissen, welche Werte von bis zu 133 ppb auf einem Drucklevel von 146 hPa erreichten. Dieser Wert ist etwas geringer als die Modelldaten, wobei der Unterschied mit dem Höhenunterschied erklärt werden kann, da die Konzentrationen von Spurengasen mit der Höhe abnehmen (Park et al. (2008)).

Das 200 hPa-Level ist repräsentativ für eine typische Flughöhe während OMO, sodass die in situ-Spurengase entlang der Flugroute mit der EMAC-Spurengasverteilung in der AMA verglichen werden können. Die in situ-Daten zeigen das gleiche Muster wie die EMAC-Verteilung mit ansteigenden Mischungsverhältnissen in Richtung AMA-Zentrum. Flug 19 streift zwar nur den Rand der AMA, trotzdem sind die in situ- $CH_4$ -Werte höher als von EMAC angezeigt. Dies passt gut zu der  $CH_4$ -Unterschätzung des Modells. Der Unterschied könnte mit der Konvektionsparametrisierung in EMAC erklärt werden, oder mit einer schwächeren chemischen Transportbarriere der AMA am südwestlichen Rand der Antizyklone, welche von EMAC stärker simuliert wurde. Der Luftmassentransport aus der Antizyklone war effektiver als simuliert und so wurden höhere Mischungsverhältnisse zur Flugroute hintransportiert.

Zusätzlich werden neben den horizontalen Querschnitten noch vertikale Querschnitte von EMAC betrachtet, um ein vollständigeres Bild der AMA im Hinblick auf ihre Ausdehnung zu erhalten. Im Querschnitt entlang  $23.7^\circ N$ , welcher dem Breitengrad



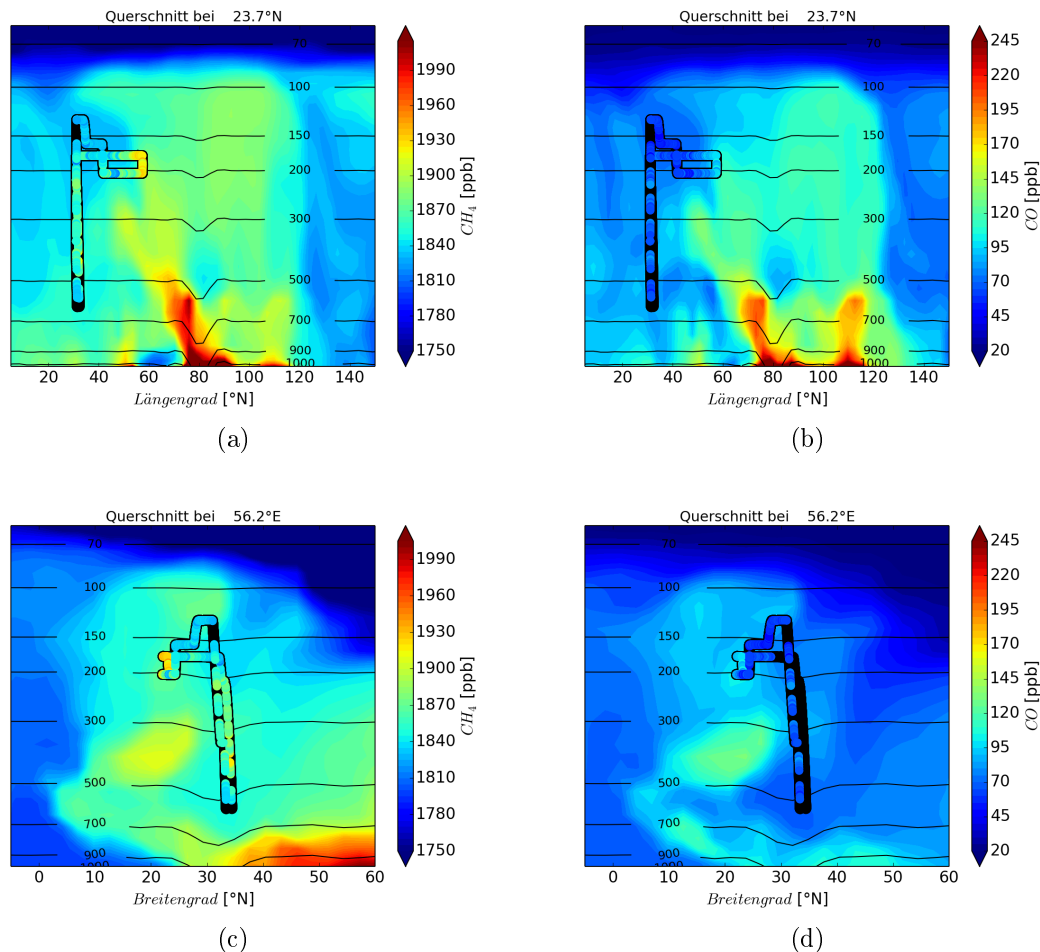


Abbildung 4.14.: Flug 19 (13.08.2015): EMAC-Tagesmittel für  $CH_4$  (a,c) und  $CO$  (b,d) entlang  $23.7^\circ N$  (a,b) und entlang  $56.2^\circ E$  (c,d) und die jeweiligen in situ-Messungen entlang des Fluges.

der Flugroute entspricht, an dem hohe  $CH_4$ -Werte gemessen wurden, wird deutlich, dass Flug 19 nur den westlichen Rand der Antizyklone in der oberen Troposphäre streifte und der Großteil des Fluges außerhalb der AMA lag (Abbildung 4.14(a)). Die Emissionsquellen liegen für  $CH_4$  zwischen  $75^\circ E$  und  $95^\circ E$  und entsprechen somit Indien und dem Golf von Bengalen. Von dort wird das  $CH_4$  vertikal nach oben transportiert. Dieser Bereich stimmt mit der Region für den Vertikaltransport der Trajektorien (Kapitel 4.1.3) überein. Eine ähnliche Lage in Bezug auf die Längengrade berichteten auch Rauthe-Schöch et al. (2016) mit Konvektion zwischen  $80^\circ E$  und  $100^\circ E$  im Sommer 2008. Der Vertikalschnitt entlang  $56.2^\circ E$  (Abbildung 4.14(c)) zeigt die  $CH_4$ -Verteilung über dem Oman, wo die in situ-Spitzenwerte gemessen wurden. Die AMA lag in der oberen Troposphäre zwischen 450 – 300 hPa ungefähr bei  $15 - 30^\circ N$ . Außerhalb der AMA sind die  $CH_4$ -Werte in der oberen Troposphäre niedriger als in der AMA. Die Mischungsverhältnisse in der freien Troposphäre unterhalb der AMA sind ebenfalls niedriger als in der AMA, sofern sie nicht von der Konvektion beeinflusst sind, wie in Abbildung 4.14(a) zwischen  $70 - 90^\circ E$  zu

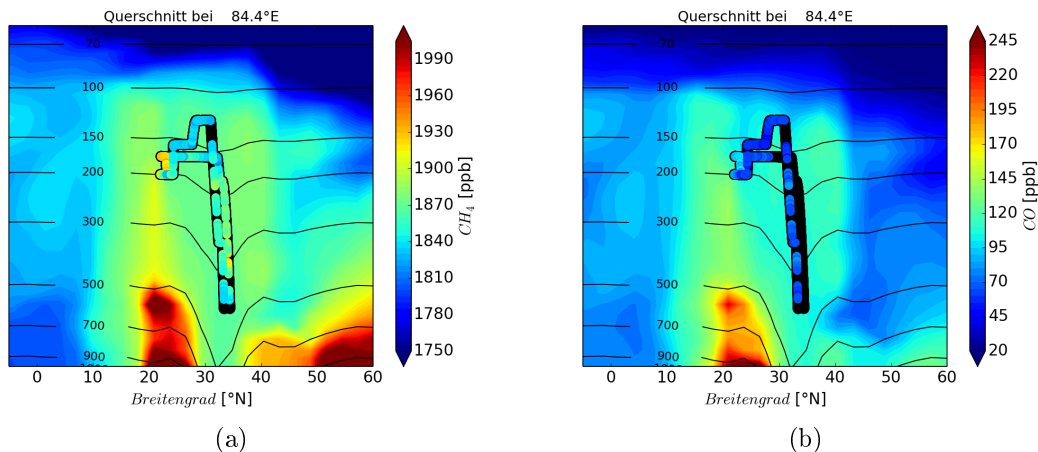


Abbildung 4.15.: EMAC-Tagesmittel für  $CH_4$  (a) und  $CO$  (b) entlang  $84.4^\circ E$ , welcher der mittleren Quellregion entspricht 10 Tage vor (03.08.2015) Flug 19 und die jeweiligen in situ-Messungen entlang des Fluges.

sehen ist. Die Querschnitte für  $CO$  (Abbildung 4.14(b,d)) zeigen die gleichen Muster, aber mit einer schwächeren Ausprägung als  $CH_4$ . Damit wird deutlich, wie gut die AMA vom Hintergrund zu unterscheiden ist und somit ein begrenztes meteorologisches Phänomen darstellt. Mit Vertikalschnitten 10 Tage vor der Messung kann die Position der Konvektion bestimmt werden. Am 03.08.2015 fand die Konvektion im Bereich  $20 - 28^\circ N$  statt (Abbildung 4.15). Über die Längengrade  $75 - 95^\circ E$  dehnte sich die Konvektion zwischen  $20^\circ N$  und  $35^\circ N$  aus. Der Vertikaltransport findet nach Bergman et al. (2013) in einer Art Kamin statt, welcher nur eine geringe horizontale Ausdehnung hat, wie auch in den Vertikalschnitten zu sehen ist. In den Querschnitten entlang  $23.7^\circ N$  hat  $CO$  Mischungsverhältnisse von ca. 90 ppb in der AMA und am Boden steigen die Werte auf 400 ppb an. Für  $CH_4$  sind die Werte in der AMA um 1850 ppb und an der Oberfläche über 2250 ppb. Insgesamt passen die EMAC-Tagesmittel für die Lage der AMA gut zu den Spurengasverteilungen der in situ-Messungen, so dass die EMAC-Tagesmittel für weitere Analysen verwendet werden.

#### 4.3.4. Globale Ausdehnung der AMA

Während OMO hat sich die AMA innerhalb des in Abbildung 4.16 dargestellten Gebietes aufgehalten. Dies kann in den EMAC-Tagesmitteln an einem starken  $CH_4$ -Gradient festgelegt werden. Hierbei wurden die AMA-Ränder als äußere Grenzen angesehen. Der westliche Rand variierte zwischen  $20 - 70^\circ E$  und der östliche zwischen  $90 - 115^\circ E$ . Der Nordrand lag in einem Bereich von  $35 - 45^\circ N$  und der Südrand zwischen  $15 - 20^\circ N$ . Dieses Gebiet schließt das von Nützel et al. (2016) angegebene

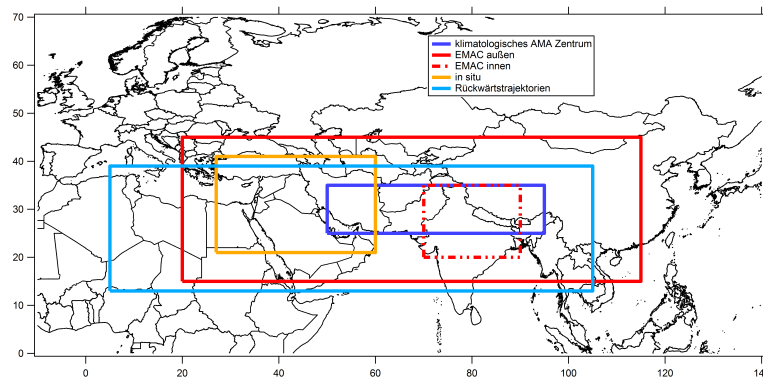


Abbildung 4.16.: Globale Ausdehnung der AMA während OMO: für EMAC-Daten auf 200 hPa, für in situ-Daten für  $[CH_4] > \text{Schwellwert}$  und der Position des klimatologischen Mittels auf 100 hPa nach Nützel et al. (2016).

klimatologische Zentrum der AMA ein. In dem Zeitraum von 1979 – 2014 lag das Zentrum der Antizyklone zwischen  $50 - 95^\circ \text{E}$  und  $25 - 35^\circ \text{N}$ . Der innere Bereich der EMAC-Ränder beschreibt die maximalen Verlagerungen des westlichen Randes nach Osten und umgekehrt. Somit liegt in diesem Bereich meist das AMA-Zentrum, zumindest aber ein Teil der AMA. In zonaler Erstreckung liegt dieser Bereich innerhalb des klimatologischen Mittels mit einem Zentrum über dem Himalaya. Die Nordsüdvariabilität der AMA stimmt gut mit dem klimatologischen Mittel überein. Folglich handelt es sich im Sommer 2015 um einen normalen Monsun in Bezug auf die Lage der AMA. In den in situ-Daten wurden  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse oberhalb des Schwellwertes in einem Gebiet von  $27 - 60^\circ \text{E}$  und  $2 - 41^\circ \text{N}$  gemessen. Dieses lag auf Grund der Flugrouten am westlichen Rand des klimatologischen Mittels in Bezug auf das Zentrum der Antizyklone. Die Lage der AMA wurde schon mittels der Rückwärtstrajektorien dargestellt (Kapitel 4.3.1) und ist ebenfalls in Abbildung 4.16 eingezeichnet. In den Trajektorien ist die Lage der AMA leicht nach Südwesten verschoben im Vergleich zu den EMAC-Daten, wobei die Trajektorien durch ihre *Release points* regional von den Flugrouten abhängig sind.

Die vertikale Ausdehnung der Antizyklone wurde in den AMA-Profilen für  $CH_4$  schon in Kapitel 4.2 gezeigt. Die AMA erstreckte sich über  $300 - 140 \text{ hPa}$  in den in situ-Daten. Dieser Bereich wird auch von Vertikalprofilen der EMAC-Tagesmittel entlang des  $56.2^\circ \text{E}$  Längengrades reflektiert. Sie zeigen in der oberen Troposphäre überwiegend erhöhte  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse in einem Bereich von  $300 - 100 \text{ hPa}$ , an manchen Tagen erstreckt sich der Bereich nach unten bis auf  $450 \text{ hPa}$ , wie in Abbildung 4.14(c) zu sehen ist. Nach Park et al. (2008) sind die höchsten Mischungsverhältnisse innerhalb der AMA von troposphärischen Spurengasen in einer Höhe von  $13 - 15 \text{ km}$  vorzufinden. Diese Angabe liegt oberhalb der hier gezeigten Höhe von  $9 - 12.5 \text{ km}$ , wobei Park et al. (2008) Satellitendaten über der AMA betrachteten. In einer Höhe von ca.  $12 \text{ km}$  ist nach Folkins and Martin (2005) die Schicht mit dem stärksten Ausströmen aus der Konvektion. Folglich konnten mit

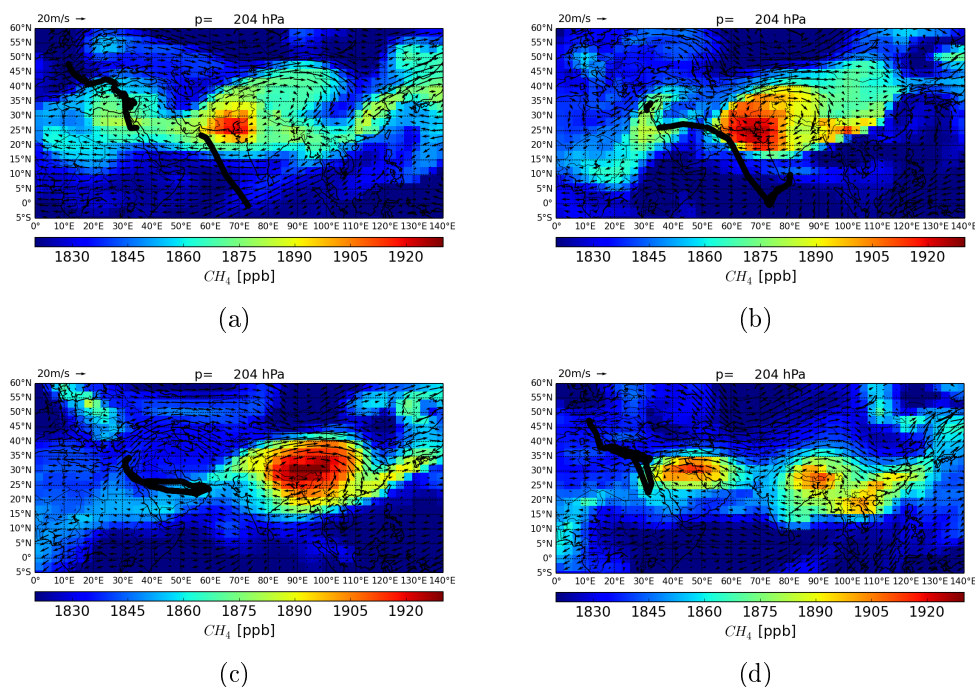


Abbildung 4.17.: Vier Positionen der AMA während OMO auf 200 hPa: a) 2-Antizyklone Mode, b) zentraler Mode, c) tibetischer Mode und d) 2-Antizyklone Mode. Zusätzlich sind die entsprechenden Flüge für jede AMA-Situation dargestellt.

den typischen Flugleveln um die 12 km die Luftmassen, welche durch Konvektion in die obere Troposphäre eingetragen wurden, in der bevorzugten Höhe für horizontale Ausbreitung mit HALO während OMO gemessen werden.

## 4.4. Lage der AMA

### 4.4.1. Einteilung in vier Moden

Die AMA unterliegt verschiedenen dynamischen Prozessen, welche ihre Stärke, ihre Ausdehnung und auch ihre Lage beeinflussen. Die meteorologische Situation kann während OMO in vier verschiedene Moden bezüglich der Lage der Antizyklone unterteilt werden. Diese sind in Abbildung 4.17 mit Hilfe von EMAC-Tagesmitteln für  $CH_4$  und dem Windfeld auf einem Druckniveau von 200 hPa dargestellt. Der erste Mode (Abbildung 4.17(a)) war vom 21.07.2015 bis 01.08.2015 und war ein 2-Antizyklone-Mode, wobei die beiden Antizyklone sich zum Ende hin langsam zu einer Antizyklone verbanden, was mit einer Ostwärtsbewegung einherging. Die westliche Antizyklone hatte ihr Zentrum zunächst über dem östlichen Mittelmeer mit einer potentiellen Temperatur von ca. 360 K. Sie driftete langsam nach Osten, ange regt durch einen Trog im Subtropenjet, welcher eine kühlere potenzielle Temperatur

von ca. 340 K mit sich führte. Die östliche Antizyklone startete bei ca.  $70^\circ$  E und verlagerte sich ebenfalls nach Osten Richtung Tibetische Hochebene. Sie startete ihre Bewegung auf Grund der Verschiebung der westlichen Antizyklone. Über einen Rücken im Subtropenjet wurde eine Luftmasse, mit einer potentiellen Temperatur von ungefähr 362 K, aus höheren Breiten in den Jet eingegliedert und über einen Trog am nordöstlichen Rand der AMA nach Süden aus dem Jet geleitet. Dieser Vorgang hat die Ostwärtsbewegung der AMA aufgehalten, sodass diese ihr Zentrum mit einer potentiellen Temperatur von ca. 352 K über der Kaschmirregion während des zweiten Modes positionierte (Abbildung 4.17(b)). Dieser ging vom 06.08.2015 bis 10.08.2015. Die Lage des Zentrums entspricht dem klimatologischen Mittel für das AMA-Zentrum (Zhang et al. (2002)) und heißt zentraler Mode. Anschließend wurde mit dem Subtropenjet ein Trog mit kühlerer potentieller Temperatur (336 K) von Westen an die AMA herangeführt. Dies hat eine leichte Verschiebung der AMA nach Osten verursacht und bildete den dritten Mode. Dieser war vom 11.08.2015 bis 18.08.2015 (Abbildung 4.17(c)) und hatte sein Zentrum über der Tibetischen Hochebene ( $82.5 - 92.5^\circ$  E). Nach Zhang et al. (2002) wird dieser Mode als tibetischer Mode bezeichnet. In der zweiten Hälfte des dritten Modes wurde eine Luftmasse, mit einer höheren potenziellen Temperatur von ca. 362 K, aus höheren Breiten nach Süden transportiert und durch den Subtropenjet abgeschnürt, sodass sie am Südrand des Jets den Nordostrand der AMA in ihrer Nordsüdausdehnung gestaucht hat und dann weiter nach Osten mit dem Jet gezogen ist. Als ausgleichende Maßnahme hat sich die AMA nach Westen ausgestreckt, diese Streckung wurde ebenfalls von Popovic and Plumb (2001) beschrieben. Die AMA dehnte sich soweit, dass dies zu Instabilitäten in der Antizyklone führte, welche ein Abbrechen einer zweiten Antizyklone westlich der Hauptantizyklone hervorriefen (Hsu and Plumb (2000)). Die zwei Antizyklone bildeten den vierten Mode vom 20.08.2015 bis 27.08.2015 (Abbildung 4.17(d)). Der erste und der vierte Mode bestanden jeweils aus zwei Antizyklonen und lagen ungefähr 20 Tage auseinander. Diese Zeitspanne spiegelt gut den von Krishnamurti and Ardanuy (1980) angegebenen Zyklus von 10 – 20 Tagen wider, in welchem eine Ausbreitung der Antizyklone nach Westen in Verbindung mit dem Ablösen einer zweiten Antizyklone stattfindet. Dieser Vorgang ist mit sogenannten „active and break“-Bedingungen des Monsuns verbunden, welche den Wechsel zwischen intensiven Regenphasen und Trockenperioden im Sommermonsun in Indien beschreibt. Die meteorologischen Bedingungen in der oberen Troposphäre sind demnach mit denen in der unteren Troposphäre verbunden.

Tabelle 4.2.: Vier verschiedene Moden der AMA während OMO: 1) 2-Antizyklone, 2) zentraler Mode, 3) tibetischer Mode und 4) 2-Antizyklone.

Mode	Flug-nr.	Datum	$CO$ [ppb]				$CH_4$ [ppb]			
			Hintergrund	$\sigma$	AMA	$\sigma$	Hintergrund	$\sigma$	AMA	$\sigma$
1)	8	21.07.	67.8	8.7	89.8	7.4	1847.1	12.3	1898.6	7.8
	9	25.07.	83.1	9.4	94.5	6.1	1870.0	11.4	1913.7	16.7
	10	28.07.	76.1	16.4	91.4	5.1	1856.4	24.8	1896.4	12.4
	11	01.08.	92.8	6.8	108.6	4.5	1823.5	21.0	1889.0	4.8
2-Antizyklone		21.07. -01.08.	80.0	10.3	96.1	5.8	1849.3	17.4	1899.4	10.4
	2)	12/13	06.08.	78.6	33.3	117.3	22.2	1827.4	26.8	1893.5
zentraler Mode	14	08.08.	76.3	8.0			1788.2	9.2		
	15/16	09.08.	77.5	12.0			1812.6	34.3		
	17/18	10.08.	76.5	7.9	98.3	7.8	1832.0	19.5	1909.3	15.0
		06.08. -10.08.	77.2	15.3	107.8	15.0	1815.1	22.5	1901.4	12.4
3)	19	13.08.	74.7	10.4	99.4	13.8	1848.0	16.3	1907.3	20.8
	20	15.08.					1865.5	16.6	1905.2	13.9
	21	18.08.	87.9	16.3	104.8	9.8	1853.0	12.9	1917.1	20.6
tibetischer Mode		13.08. -18.08.	81.3	13.4	102.1	11.8	1855.5	16.6	1909.9	18.4
	4)	22	23.08.				1857.0	8.2	1927.9	22.6
2-Antizyklone	23	25.08.	65.7	12.4	93.8	7.6	1855.9	8.5	1926.4	21.0
	24	27.08.					1853.7	14.6	1889.1	8.8
		23.08. -27.08.	65.7	12.4	93.8	7.6	1855.5	10.4	1914.4	17.5

#### 4.4.2. Vier Moden im $CH_4$

Der Unterschied in den vier Moden kann auch in den in situ-Daten für  $CH_4$  beobachtet werden. Die Daten wurden in einem Höhenintervall von 300 – 140 hPa nach Hintergrund und AMA unterteilt. Eine detaillierte Übersicht ist in Tabelle 4.2. Die Mischungsverhältnisse von  $CH_4$  variierten zwischen den Moden. Anhand der in situ-Daten und der EMAC-Tagesmittel wird auch die Dynamik der AMA erklärt. Der Hintergrund für  $CH_4$  zeigt für den ersten, dritten und vierten Mode ähnliche Werte und für den zentralen Mode einen wesentlich geringeren Wert. Das niedrige  $CH_4$ -Mischungsverhältnis wurde während Flügen über dem Indischen Ozean in niedrigen Breiten aufgezeichnet. Die ITCZ verlagert sich im Nordhemisphärensommer nach Norden und liegt über Indien im Allgemeinen zwischen 5 – 30° N (Lawrence and Lelieveld (2010)). Damit sind die Flüge über dem Arabischen Meer und der Lakkadivensee von der Südhemisphäre beeinflusst und damit auch die  $CH_4$ -Werte niedriger, wie in Kapitel 4.2 beschrieben. Die drei anderen Moden hatten im Hintergrund  $CH_4$ -Werte, die ca. 35 – 40 ppb oberhalb des Südhemisphärenwertes lagen und den Hintergrund der Nordhemisphäre repräsentierten. Ihre Werte passen gut zu dem globalen Mittel von  $1845 \pm 2$  ppb für 2015, das aus den  $CH_4$ -Messungen

der GAW (Global Atmosphere Watch)-Stationen der WMO (World Meteorological Organization) berechnet wurde (WMO (2016)). Dieser Wert unterscheidet sich von dem oben angegebenen Wert der Global Monitoring Division von NOAA/ESRL (1834 ppb, 2015), da andere Messstationen in die Berechnung eingeflossen sind, welche nicht nur in der maritimen Grenzschicht liegen. Unter dem AMA-Einfluss unterscheiden sich die Mischungsverhältnisse von  $CH_4$  von Mode zu Mode. Dies kann zum einen an dem Abstand zwischen HALO und der AMA-Mitte hängen. Je größer der Abstand zu der Antizyklone ist, desto geringer sind die gemessenen Mischungsverhältnisse, wie schon in Kapitel 4.3.1 erwähnt. Zum anderen werden die Verteilungen der Mischungsverhältnisse in der oberen Troposphäre von der Dynamik der AMA bestimmt. Dies wird zunächst anhand der  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse diskutiert. Während des ersten Modes (2-Antizyklone-Mode) wurde unter dem AMA-Einfluss das niedrigste  $CH_4$ -Mischungsverhältnis gemessen. Die Messungen fanden in der westlichen Antizyklone über dem östlichen Mittelmeer statt. Die Mischungsverhältnisse für  $CH_4$  unterliegen verschiedenen Faktoren. Dazu gehört unter anderem die Konvektion, die in der Monsunzeit sowohl in ihrer Stärke, als auch in ihrer Position variiert (Randel and Park (2006)). Je nach Position der Konvektion stehen unterschiedlich starke Emissionsquellen zur Verfügung, wie schon anhand der Oberflächenmischungsverhältnisse in Abbildung 4.5 gezeigt wurde. Wenn die Konvektion über dem Golf von Bengalen stattfindet, wird weniger verschmutzte Luft in die obere Troposphäre transportiert. Dies ändert sich, wenn sich die Lage der Konvektion hin zu Gebieten mit hohen Emissionen verschiebt, z.B. Richtung Bangladesch. Dort kann stark verschmutzte Luft nach oben in die AMA transportiert werden. Neben der räumlichen Verteilung von Emissionsquellen sind diese auch zeitlich variabel (Garny and Randel (2013), Baker et al. (2012)). Die Stärke der Konvektion wird durch die verfügbare Energie bestimmt, welche abhängig von der Art der Oberfläche ist. Die dafür entscheidende thermische Erwärmung unterscheidet sich zwischen dem heißen Land und dem relativ kalten Meer (Dethof et al. (1999)). Somit ist die Konvektion über Land stärker als über dem Meer. Durch die Verschiebung der Konvektion gibt es zwischen den beiden Extrema, von starker Konvektion mit hohen Emissionsquellen und schwacher Konvektion über Gebieten mit geringerer Emission, alle Zwischenstufen. In den Tagen bevor die westliche Antizyklone sich von der Hauptantizyklone abgeschnürt hatte, wurden keine hohen  $CH_4$ -Werte mit EMAC simuliert. Somit sind auch die eingeschlossenen Mischungsverhältnisse in der westlichen Antizyklone niedrig. Dennoch sind sie um 50.2 ppb höher als außerhalb der Antizyklone. In den Tagen von Flug 8 und 9 blieb die westliche AMA stationär über dem östlichen Mittelmeer und die Flugrouten waren zum Teil in der westlichen AMA. Anschließend hat sich ein Trog im Subtropenjet mit positiver relativer Vorticity und einer potenziellen Temperatur von ca. 340 K nach Osten bewegt und die westliche Antizyklone nach Osten verschoben. Durch diese Verlagerung des AMA-Zentrums fand Flug 10 am

westlichen Rand der AMA statt. Die Ostwärtsbewegung und die damit einhergehende Verschmelzung der westlichen mit der östlichen zu einer Antizyklone war für Flug 11 soweit fortgeschritten, dass eine Übergangsphase vorlag. Außerdem flog HALO im Flug 11 über das Arabische Meer, wo der AMA-Einfluss gemessen wurde. Die Hintergrundwerte für  $CH_4$  waren von der Südhemisphäre geprägt, was sich auch an den niedrigen  $CH_4$ -Werten im Vergleich zu den Hintergrundwerten der drei vorangegangenen Flüge erkennen lässt. Wenn für die Betrachtung der  $CH_4$ -Daten Flug 11 aus dem ersten Mode ausgeschlossen wird, so ergibt sich eine Differenz zwischen Hintergrund und AMA von nur noch 45.0 ppb. Was die weniger starke Konvektion in den Tagen vor den Messungen über dem Konvektionsgebiet in der Region von Nepal bis Myanmar bestätigt. Die Rückwärtstrajektorien stammten für den ersten Mode überwiegend aus höheren Schichten und legten vor allem in den Tagen 10 – 6 vor den Messungen größere Strecken zwischen dem Himalaya und dem östlichen Mittelmeer zurück. Dies ist darauf zurückzuführen, dass diese Trajektorien bereits in der AMA-Zirkulation, bzw. dem tropischen Jetstream eingebettet waren. Die Trajektorien wurden daher wahrscheinlich nicht von Luftmassen beeinflusst, welche frisch durch Konvektion in die obere Troposphäre eingetragen wurden und somit auch nicht mit jüngst verschmutzten Luftmassen in Kontakt kamen. Außerdem waren sie zum Teil 5 – 7 Tage in der westlichen Antizyklone eingeschlossen.

Nachdem die meteorologische Situation von Flug 11 schon eine Übergangsphase von zwei Antizyklonen zu einer dargestellt hat, bestand der zweite Mode aus einer Antizyklone. Während des zweiten Modes gewann die Konvektion an Stärke, sodass das  $CH_4$ -Mischungsverhältnis in der oberen Troposphäre in der AMA zunahm. Diese Zunahme ist auch im AMA- $CH_4$ -Wert von Flug 12/13 auf Flug 17/18 zu erkennen. Das Gebiet der Vertikalbewegung erstreckte sich von Zentralindien nach Nordosten über die Indo-Ganges-Ebene Richtung Nepal. Es lag damit am südöstlichen Rand der AMA, wobei nach Park et al. (2007) der südöstliche AMA-Rand die bevorzugte Position für die Konvektion ist. Die Luftmassen werden über diesem begrenzten Gebiet in einer Art Kamin (Bergman et al. (2013)) in die obere Troposphäre transportiert. Der Kamin weitet sich ca. 20 hPa unterhalb der 200 hPa-Ebene, sodass die Spurengase über die gesamte AMA verteilt werden können (Park et al. (2009)). In der Antizyklone werden die Luftmassen durch deren Zirkulation festgehalten. Diese Abgrenzung wird unter anderem in Ploeger et al. (2015) und Garny and Randel (2013) mit der potenziellen Vorticity (PV) beschrieben. Im Zentrum der AMA ist die PV gering, während sie außerhalb höhere Werte aufweist. Der PV-Gradient dazwischen beschreibt die Transportbarriere für Spurengase, welche jedoch zu einem gewissen Grad durchlässig ist, sodass ein Austausch zwischen dem AMA-Inneren und seiner Umgebung stattfinden kann (Ploeger et al. (2015)). Auf Grund der AMA-Lage, ihrer Spurengasverteilung und den Flugrouten über dem Arabischen Meer kann der AMA-Einfluss nicht in allen vier Flügen des zentralen Modes gesehen werden. Das



AMA-Zentrum lag in dem Zeitraum relativ stabil über der Kaschmirregion, dennoch variierte die Verteilung der Spurengase. So wurden  $CH_4$ -Werte oberhalb des Schwellwertes nur in Flug 12/13 und 17/18 gemessen. Die Route von Flug 14 über der Lakkadivensee war südlich der AMA und wurde nur von der Südhemisphäre beeinflusst. Während Flug 15/16 nahm das Mischungsverhältnis von  $CH_4$  in der Nähe der AMA zu, überstieg aber nicht den Schwellwert. Am darauf folgenden Tag zeigte Flug 17/18 im selben Bereich  $CH_4$ -Werte, welche den Schwellwert überstiegen. Die AMA hatte sich somit vom 09.08.2015 auf den 10.08.2015 nach Westen ausgedehnt, sodass HALO die AMA, bzw. ihren Rand durchflog. Die von der AMA beeinflussten Trajektorien benötigten vom  $80^\circ$  E Längengrad ca. 1 – 2 Tage um bis zu den Flugrouten über dem Arabischen Meer zu gelangen. Die Luftmassen über dem Arabischen Meer südlich des AMA-Einflusses hatten ihren Ursprung überwiegend über dem Golf von Bengalen und wurden mit einer zonalen Strömung Richtung Messregion transportiert, ohne mit der AMA zu interagieren. Der  $CH_4$ -Unterschied ist mit 86.3 ppb am stärksten im Vergleich zu den anderen Moden, da hier Luftmassen aus der AMA direkt mit Hintergrundwerten aus der Südhemisphäre verglichen werden. Dieser Unterschied entspricht dem  $CH_4$ -Nordsüdgradienten von Bergamaschi et al. (2013). Außerdem passt der Anstieg auch zu dem Gradienten der in situ-Profile zwischen Nord- und Südhemisphäre (Kapitel 4.2). Der Hintergrund der Südhemisphäre mit einem  $CH_4$ -Mischungsverhältnis von  $1815.1 \pm 22.5$  ppb bezieht sich im zentralen Mode nur auf die obere Troposphäre und hat im Vergleich zum Profil der Südhemisphäre mit  $1778.3 \pm 19.5$  ppb ein höheres Mischungsverhältnis. Der  $CH_4$ -Anstieg mit der Höhe wurde bereits im Südhemisphärenprofil in Kapitel 4.2 veranschaulicht. Durch den höheren Ausgangswert für die Südhemisphäre entspricht die Differenz zum AMA-Wert dem des Nordsüdgradienten.

Im dritten Mode hatte sich das AMA-Zentrum ein Stück nach Osten verlagert und der  $CH_4$ -Wert lag höher als in den beiden vorangegangenen Moden. Zum einen wurden höhere  $CH_4$ -Werte in der AMA simuliert, zum anderen nahmen die in situ- $CH_4$ -Mischungsverhältnisse von Flug 19 auf Flug 21 zu, was auf eine Zunahme der Konvektion, bzw. dem Einfluss stärkerer Emissionsquellen hinweist. Die Zunahme der Konvektion ist auch in der Differenz zwischen AMA und Hintergrund für  $CH_4$  von 57.8 ppb sichtbar. Dieser Wert ist höher als die Differenz im ersten Mode, obwohl sie vergleichbare Mischungsverhältnisse im Hintergrund hatten. Mit Hilfe der Rückwärtstrajektorien lässt sich eine leichte Verlagerung der Konvektion vom zweiten zum dritten Mode hin Richtung Osten erkennen, da die Konvektion im tibetischen Mode in einem Gebiet zwischen Nepal und Bangladesch lag. Dieses wurde schon in Kapitel 4.1.5 anhand von Flug 19 als starke Emissionsquelle diskutiert. Die Verlagerung des Konvektionsgebietes geht mit der Verschiebung der AMA in der oberen Troposphäre einher. Die Position der Konvektion fand damit weiterhin am südöstlichen AMA-Rand statt und bestätigt erneut die bevorzugte Lage der Konvektion

an der AMA (Park et al. (2007)). Außerdem benötigten die Trajektorien ca. 3 Tage vom 80° E Längengrad bis zu Flugrouten über der Arabischen Halbinsel. Im tibetischen Mode veränderte sich die Form der AMA. Während Flug 19 streckte sich die AMA zunächst nach Westen bis zur Ostküste der Arabischen Halbinsel aus und zog sich um Flug 20 herum zusammen, sodass sie nicht so weit nach Westen reichte. Die Streckung nach Westen geht mit einer Verstärkung des Windfelds im Nordosten und einer gleichzeitigen Abschwächung im Südwesten einher. Danach zog ein Höhenkeil im Subtropenjet mit einer potentiellen Temperatur von 337 K aus dem Westen heran. Dieser wurde durch einen Trog mit einer potentiellen Temperatur von 362 K am Nordwestrand der AMA leicht nach Süden abgelenkt. Dort verdrängte er die AMA, sodass diese ihre Streckung nach Westen unterbrach und sich um ihr Zentrum über der Tibetischen Hochebene konzentrierte. Anschließend wurde die AMA durch eine Luftmasse im Nordosten gestaucht, wie in Kapitel 4.4.1 beschrieben, und danach streckte sie sich erneut Richtung Westen. Ihre westlichen Ausläufer reichten bis über die Arabische Halbinsel und stellen so den Spurengastransport nach Westen mittels Westwärtsbewegung dar (Pan et al. (2016)). Dieses Verhalten ist in der Zunahme der  $CH_4$ -Werte von Flug 19 auf Flug 21 zu sehen. Zusätzlich stimmen die  $CH_4$ -Muster entlang der Flugrouten mit den  $CH_4$ -Verteilungen der EMAC-Tagesmittel überein. Der vierte Mode hatte erneut zwei Antizyklone und zeigte die höchsten  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse über die gesamte Kampagne. Diese wurden vor allem in Flug 22 und 23 in der westlichen Antizyklone über Ägypten gemessen. Flug 24 führte Richtung Westen über das Mittelmeer und fand daher außerhalb der AMA statt, auch wenn er  $CH_4$ -Werte oberhalb des Schwellwertes zeigte. Außerdem verschob sich die westliche Antizyklone während Flug 24 nach Osten und leitete damit das Ende dieses Modes ein. Der Unterschied zwischen Hintergrund und AMA ist für den gesamten Mode mit 58.9 ppb vergleichbar zum dritten Mode. Eine Möglichkeit für den Spurengastransport in den Westen ist die westwärts gerichtete Wirbelablösung (engl. „*eddy shedding*“). Sie startet mit einer Streckung der Antizyklone nach Westen, bis diese soweit gedehnt ist, dass sie auseinander bricht und sich eine zweite Antizyklone von der Hauptantizyklone im Westen ablöst (Popovic and Plumb (2001)). Dieser Prozess startete im dritten Mode mit der Streckung der AMA nach Westen, welcher durch die Störung am Nordostrand der AMA verursacht wurde. Anschließend wurden die hohen  $CH_4$ -Werte in der westlichen Antizyklone eingeschlossen und mit ihr weiter Richtung Westen transportiert. Wenn nur die Flüge in der westlichen AMA über Ägypten, also Flug 22 und 23, berücksichtigt werden, steigt das AMA-Mischungsverhältnis für  $CH_4$  auf 1927.1 ppb und führt damit zu einem Unterschied von 70.7 ppb zwischen Hintergrund und AMA. Diese hohen Mischungsverhältnisse können mit der starken Konvektion vor dem vierten Mode erklärt werden, welche schon im zweiten und dritten Mode eine Zunahme aufwies. Die Rückwärtstrajektorien vom vierten Mode zeigen eine längere Aufenthaltszeit über den Quellregionen

zwischen Indo-Ganges-Ebene, Nepal und Bangladesch, da sie sich in den Tage 10–8 vor der Messung in tieferen Schichten in diesem Gebiet aufhielten (im Vergleich zu den Trajektorien des ersten Modes). In den letzten ca. 5 Tagen vor den Messungen bewegten sich die Trajektorien hauptsächlich in der westlichen Antizyklone.

In den vier Moden spielte sowohl die Lage der Antizyklone zu den Flugrouten, als auch meteorologische Einflussfaktoren auf die AMA eine Rolle. So zeigten sich die höchsten  $CH_4$ -Werte nicht unbedingt in den beiden 2-Antizyklone-Moden, obwohl die Distanz zwischen Flugroute und AMA-Zentrum dabei geringer war, als im zweiten und dritten Mode. Die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse waren vielmehr von der Stärke und Position der Konvektion in den Tagen vor den Messungen abhängig.

### 4.4.3. Abschätzen der chemischen Isolation

Die vier Moden können in den  $CO$ -Werten nicht so eindeutig unterschieden werden wie im  $CH_4$ . Durch Probleme mit dem  $CO$ -Laser in der zweiten Hälfte der Kampagne fehlen zum einen Daten, zum anderen sind die Erklärungen für  $CH_4$  nicht auf  $CO$  übertragbar. Die  $CO$ -Mischungsverhältnisse variierten sowohl im Hintergrund, als auch in der AMA für alle vier Moden (Tabelle 4.2). Im Gegensatz zu  $CH_4$  zeigt sich in den Hintergrundmessungen für  $CO$  kein Unterschied in der oberen Troposphäre zwischen Nord- und Südhemisphäre. Aber nach Stehr et al. (2002) gibt es einen Unterschied in  $CO$  in der unteren Troposphäre, mit niedrigeren Werten in der Südhemisphäre und höheren Werten in der Nordhemisphäre. Das Mischungsverhältnis von  $CO$  wird in der oberen Troposphäre hauptsächlich von der Oxidation von  $CH_4$  zu  $CO$  und der Oxidation von  $CO$  mit  $OH$  bestimmt (Pandis and Seinfeld (2006)), wie in Kapitel 1.2 beschrieben. In den AMA-Werten ist für  $CO$  ebenfalls keine Zunahme vom ersten zum vierten Mode hin zu erkennen, wie im  $CH_4$  zu sehen war. Folglich spiegelt  $CO$  den Anstieg in der Konvektion, bzw. eine Positionsverlagerung hin zu stärkeren Emissionsquellen nicht wider. Die  $CH_4$ - und  $CO$ -Quellen haben zum Teil unterschiedliche Ursprünge und variieren zeitlich unabhängig voneinander. Eine Übereinstimmung zum  $CH_4$  gibt es in den Differenzen zwischen Hintergrund und AMA. Im ersten Mode ist der Unterschied mit 16.1 ppb am geringsten und im zweiten mit 30.6 ppb am höchsten. Dies passt zu den  $CH_4$ -Differenzen der beiden Moden. Der Anstieg im vierten Mode ist mit 28.1 ppb ähnlich zum zweiten Mode, allerdings repräsentiert er nur einen Flug. Im dritten Mode beträgt die Differenz 20.7 ppb und liegt damit zwischen den anderen Werten.

Ein geringfügiger Unterschied ist unter dem AMA-Einfluss im  $CO$  zwischen den Moden mit einer Antizyklone und denen mit zwei Antizyklonen sichtbar. Bei einer Antizyklone sind die  $CO$ -Mischungsverhältnisse mit einem Mittel von  $104.9 \pm 13.4$  ppb

etwas höher als in den 2-Antizyklone-Moden in der westlichen Antizyklone mit einem Mittel von  $95.6 \pm 6.1$  ppb. Wenn Flug 11, da er von der östlichen Antizyklone beeinflusst wurde, in den Mittelwerten zu der 1-Antizyklone-Situation gezogen wird. Dann ergeben sich für den Mittelwert der östlichen Antizyklone  $105.6 \pm 11.6$  ppb und für die westliche  $92.4 \pm 6.5$  ppb. Die Differenz ist 13.3 ppb. Sie liegt im Bereich der Standardabweichungen, dennoch könnte sie mit dem  $CO$ -Abbau in der westlichen Antizyklone in der oberen Troposphäre erklärt werden. Diese These wird im Folgenden überprüft.

Mittels der atmosphärischen Lebensdauer von  $CO$  wird die tägliche Abbaurate für  $CO$  berechnet. Hierfür ist es zunächst notwendig die Massenerhaltung zu betrachten. Diese setzt sich nach Pandis and Seinfeld (2006) für eine chemische Substanz in einem Volumen in der Atmosphäre zusammen zu Gleichung 4.2.

$$\frac{dQ}{dt} = (F_{in} - F_{out}) + (P - R) \quad (4.2)$$

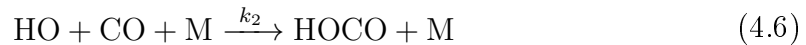
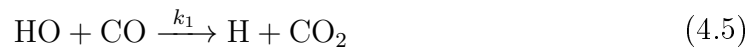
Hierbei ist  $Q$  die Menge, bzw. das Mischungsverhältnis der Spezies in dem Volumen,  $F_{in}$  die Flussrate in das Volumen hinein und  $F_{out}$  die Flussrate aus dem Volumen heraus,  $P$  die Emissionsrate in das Volumen hinein,  $R$  die Verlustrate bzw. die Abbaurate der Spezies und  $t$  die Zeit. Für die Berechnung müssen zunächst einige Annahmen gemacht werden. Die erste Annahme ist, dass die westliche Antizyklone eine abgegrenzte Luftmasse ist und somit ein geschlossenes Volumen darstellt. Damit gilt für die Flussraten  $F_{in} = 0$  und  $F_{out} = 0$ , dies bedeutet, dass kein Austausch zwischen Antizyklone und Umgebung stattfindet. Für diese Annahme muss die Transportbarriere stark ausgeprägt sein, was durch eine geschlossene Zirkulation um die AMA vorhanden sein kann. Des Weiteren muss angenommen werden, dass die östliche Antizyklone die einzige Emissionsquelle ist und damit keine weiteren Emissionen in die westliche Antizyklone eingehen, sobald diese abgeschnürt ist, d.h.  $P = 0$ . Damit dürfen in der Antizyklone keine weiteren Quellen für  $CO$  existieren, wie z.B. durch die Oxidation von  $CH_4$ . Die  $CO$ -Produktion durch  $CH_4$  kann in der oberen Troposphäre als sehr gering abgeschätzt werden, da das Zwischenprodukt  $HCHO$  nur im unteren ppt-Bereich (um ca. 30 ppt) vorlag, wie in Kapitel 2.1.5 beschrieben. Somit wird  $CO$  ebenfalls nur im unteren ppt-Bereich über die  $CH_4$ -Oxidation produziert und kann für die Betrachtung hier vernachlässigt werden. Somit ist die östliche Antizyklone die einzige Emissionsquelle für die westliche Antizyklone. Die östliche Antizyklone wird durch die Konvektion ständig mit jüngst verschmutzten Luftmassen versorgt. Ihre  $CO$ -Mischungsverhältnisse sind die Anfangsbedingungen für die westliche Antizyklone. Die Abbaurate von  $CO$  bleibt bestehen. Folglich wird Gleichung 4.2 zu 4.3.

$$\frac{dQ}{dt} = -R \quad (4.3)$$

Der Abbau  $R$  von  $CO$  in der oberen Troposphäre hängt hauptsächlich von der Reaktion mit  $OH$  ab, da dieser die stärkste Senke ist (Pandis and Seinfeld (2006)). Die Abbaurate kann demnach beschrieben werden mit Gleichung 4.4.

$$-R = -k * [CO] * [OH] \quad (4.4)$$

Die Reaktionskonstante  $k$  wird nach IUPAC (*International Union of Pure and Applied Chemistry*) bestimmt. Die Reaktionen 4.5 und 4.6 werden dabei nach Atkinson et al. (2006) berücksichtigt.



Dabei ist die Reaktionskonstante  $k_1 = 1.44 * 10^{-13} \frac{cm^3}{Molekuele*s}$  für die Reaktion 4.5 und die Reaktionskonstante  $k_2 = \frac{1.44*10^{-13}}{4.2*10^{19}} * ([M] \frac{Molekuele}{cm^3}) \frac{cm^3}{Molekuele*s}$ , welche von der Konzentration des Stoßpartners  $M$ , z.B. Stickstoff ( $N_2$ ), abhängt, für die Reaktion 4.6 zuständig. Die Reaktionskonstante  $k$  aus Gleichung 4.4 setzt sich aus  $k_1$  und  $k_2$  zusammen zu Gleichung 4.7.

$$k = k_1 + k_2 = 1.44 * 10^{-13} \left( 1 + \frac{[N_2]}{4.2 * 10^{19}} \frac{Molekuele}{cm^3} \right) \frac{cm^3}{Molekuele * s} \quad (4.7)$$

Der Anteil von  $N_2$  in der Atmosphäre liegt bei 78.1%. Für die Berechnung von  $k$  muss dieser in  $\frac{Molekuele}{cm^3}$  umgerechnet werden. Dies ist mittels der idealen Gasgleichung inklusive dem Faktor  $10^6$ , zum Umrechnen von  $m^3$  zu  $cm^3$ , möglich (4.8).

$$n = \frac{p * N_A}{T * R} * \frac{1}{10^6} \quad (4.8)$$

Neben den Konstanten, wie Avogadrokonstante  $N_A = 6.022 * 10^{23} \frac{1}{mol}$  und ideale Gaskonstante  $R = 8.314 \frac{J}{mol*K}$ , gehen der Druck  $p$  (in Pa) und die Temperatur  $T$  (in K) ein. Für die Temperatur wurde die durchschnittliche Temperatur der oberen Troposphäre während OMO von 222.0 K verwendet und für den Druck wurden 200 hPa, als ein typisches Fluglevel, eingesetzt. Damit ergibt sich aus Gleichung 4.7 für  $k$  (4.9):

$$k = 1.61 * 10^{-13} \frac{cm^3}{Molekuele * s} \quad (4.9)$$

Des Weiteren wird das  $OH$ -Mischungsverhältnis benötigt. Hierfür wird ein mittlerer  $OH$ -Wert für die gesamte Kampagne verwendet, welcher aus Daten von „HORUS“ (MPIC) und „AIRLIF“ (FZJ) bezogen wurde. Das mittlere  $OH$ -Mischungsverhältnis war 0.364 ppt, dieser Wert ist tagsüber gültig. Für die Berechnung wird ein 24 h-Wert benötigt, welcher auch die Nacht mit einem  $OH$ -Mischungsverhältnis von 0 ppt berücksichtigt. Damit werden die Tag- und Nachtwerte addiert und durch den Faktor 2 geteilt, unter der Annahme, dass ein Tag sich in je zwölf Stunden Helligkeit und Dunkelheit aufteilt. Daraus ergibt sich ein Mischungsverhältnis von 0.182 ppt für  $OH$  während OMO. Für das  $CO$ -Mischungsverhältnis wird das Mittel über die östliche Antizyklone aus den 1-Antizyklone-Moden und Flug 11 von 105.6 ppb verwendet. Damit ergibt sich für  $R$  aus Gleichung 4.4 (4.10).

$$R = 1.32 * 10^5 \frac{\text{Molekuele}}{\text{cm}^3 * \text{s}} \quad (4.10)$$

Umgerechnet auf Mischungsverhältnis pro Tag ergibt sich für  $R$  (4.11).

$$R = 1.75 \frac{\text{ppb}}{\text{d}} \quad (4.11)$$

Für die  $CO$ -Differenz von 13.3 ppb werden somit 7.6 Tage benötigt. Anhand der Rückwärtstrajektorien kann die Aufenthaltszeit in der westlichen Antizyklone auf bis zu 5 – 7 Tage abgeschätzt werden. Als Beispiele sind in Abbildung 4.18 der Flug 9 am 25.07.2015 während des ersten Modes und Flug 22 am 23.08.2015 während des vierten Modes dargestellt. Beide zeigen eine Zirkulation in der westlichen AMA an den Tagen bevor sie die *Release points* erreichen. Die Trajektorien haben ihren Ursprung in der östlichen Antizyklone und strömen dann nach Westen in die westliche AMA. Dort verweilen sie 5 – 7 Tage. Durch die Übereinstimmung der Zugbahnen der einzelnen Trajektorien ist anzunehmen, dass der Einfluss der Umgebung gering ist und die AMA für eine gewisse Zeit eine isolierte Luftmasse darstellt. Dies unterstützt die Annahmen für die Berechnung, dass die westliche Antizyklone eine Luftmasse darstellt, welche Austauschprozesse mit der Umgebung nur zu einem

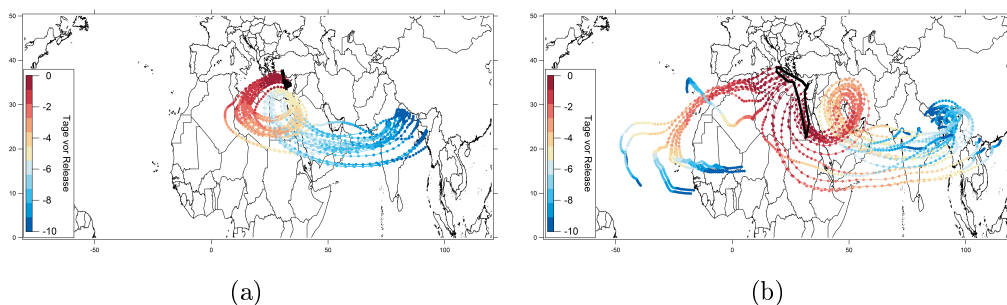


Abbildung 4.18.: Aufenthaltsdauer der Rückwärtstrajektorien in der westlichen AMA für (a) Flug 9 am 25.07.2015 während des ersten 2-Antizyklone-Modes und (b) Flug 22 am 23.08.2015 während des vierten 2-Antizyklone-Modes.

gewissen Grad eingeht. Damit hat die westliche Antizyklone einen Anfangszustand mit einem bestimmten  $CO$ -Mischungsverhältnis, welches vom Mischungsverhältnis der östlichen AMA abhängt. In den Flügen 10 und 23 (Anhang A.4) sind die Zirkulationen in der westlichen AMA nicht so stark ausgeprägt, wie in den hier gezeigten Beispielen, dennoch lassen sich ähnliche Muster erkennen. Die Abnahme im  $CO$  von der östlichen zur westlichen AMA hin, kann mit der Oxidation durch  $OH$  erklärt werden und daher auch als Alterungsprozess der Luftmasse angesehen werden.

## 4.5. Hohe $CH_4$ -Mischungsverhältnisse außerhalb der AMA

Neben dem direkten AMA-Einfluss durch die Lage der Antizyklone zur Flugroute, gab es auch Fälle in denen Luftmassen aus der Antizyklone heraus und in die Regionen der Flugrouten transportiert wurden oder aus anderen Konvektionsgebieten stammten. In diesen Luftmassen konnten ebenfalls erhöhte Spurengasmischungsverhältnisse gemessen werden, welche bezüglich des  $CH_4$ -Schwellwertes als AMA-beeinflusst markiert wurden. Im Folgenden werden drei während OMO beobachtete Fälle näher analysiert.

### 4.5.1. Ausströmen einer Luftmasse aus der AMA am südwestlichen Rand

Während Flug 11 wurden  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse oberhalb des Schwellwertes südlich des Omans über dem Arabischen Meer gemessen, wie in Abbildung 4.19(a) zu sehen ist. Die Mischungsverhältnisse waren  $1889.0 \pm 4.8$  ppb für  $CH_4$  und  $108.6 \pm 4.5$  ppb für  $CO$ . Des Weiteren ist zu erkennen, dass die simulierte  $CH_4$ -Verteilung über der Arabischen Halbinsel und über Asien höhere Werte anzeigt, als über dem Mittelmeer. Im Bereich der erhöhten in situ-Werte simuliert EMAC höhere  $CH_4$ -Werte in einem Gebiet mit sehr schwachem Wind. Nordöstlich des Gebietes liegt die geschlossene AMA-Zirkulation über der Kaschmirregion. Die Flugroute führte außerhalb der AMA über die Arabischen Halbinsel und das Arabische Meer.

Die meteorologische Situation der AMA wurde für Flug 11 am 01.08.2015 in Kapitel 4.4 als eine Übergangsphase nach dem ersten 2-Antizyklone-Mode beschrieben. Durch die Verschiebung der westlichen Antizyklone nach Osten durch einen Trog im Subtropenjet mit einer ca. 20 K kühleren potentiellen Temperatur als in der AMA,

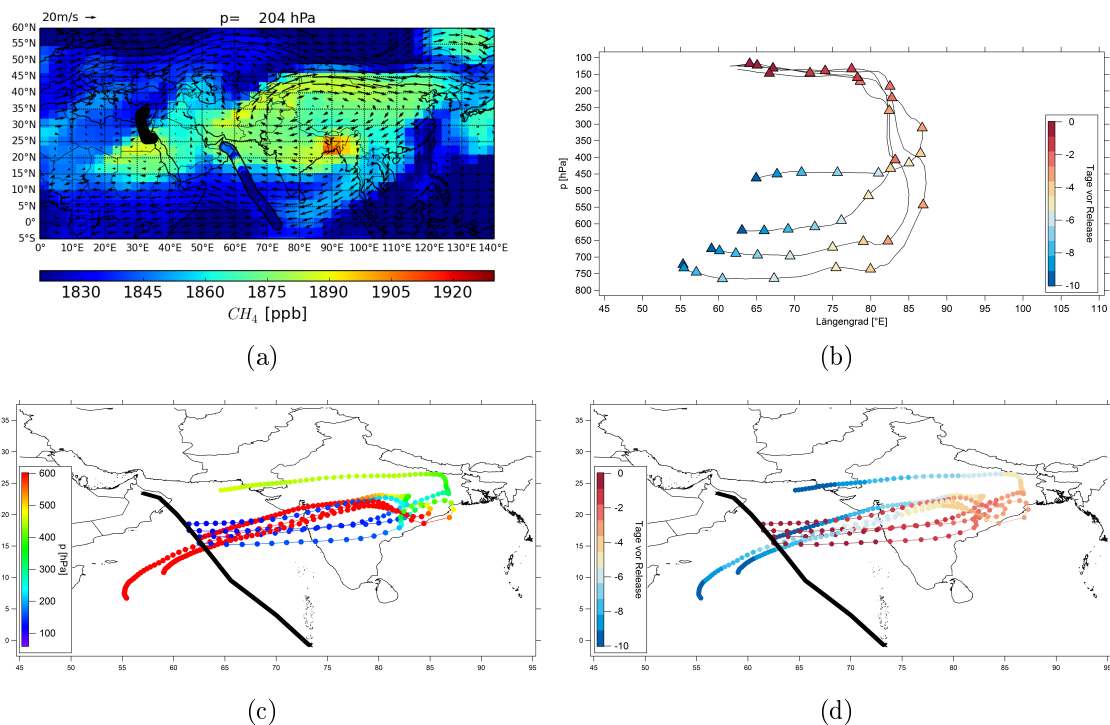


Abbildung 4.19.: Flug 11 (01.08.2015): (a)  $CH_4$  in situ-Daten und EMAC-Tagesmittel auf 200 hPa, (b) Rückwärtstrajektorien entlang des Längengrades gegen den Druck mit farbkodierter Zeit, Rückwärtstrajektorien mit farbkodiertem Druck (c) und farbkodierter Zeit (d).

verband sich die westliche Antizyklone mit der östlichen zu einer Antizyklone. Hierbei veränderten sich die Strömungsmuster in der oberen Troposphäre, sodass sich der Wind während der Verschmelzung über einem Gebiet zwischen Nahem Osten und Indien zunächst abschwächte. Danach hat sich das Windfeld wieder stärker ausgebildet. Vor allem hatten sich die Strömungslinien für die östliche AMA westlich des Himalayas verstärkt und folglich erneut eine intakte Zirkulation der AMA hergestellt. Das AMA-Zentrum befand sich dabei über der Kaschmirregion, wo es schon auf der Position für den zweiten Mode, dem zentralen Mode, lag.

Die Rückwärtstrajektorien für die erhöhten  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse (Abbildung 4.19(b,c)) hatten ihren Ursprung über dem Arabischen Meer in einer Höhe von 800 – 600 hPa. Mit der bodennahen Südwestströmung des Monsuns (Kraus (2007)) flossen sie Richtung Osten über den indischen Subkontinent. Erst ab ca. 5 – 2 Tage vor der Messung war schwache Konvektion über der Indo-Ganges-Ebene und südlich davon auszumachen (Abbildung 4.19(d)). Bis dort zogen die Trajektorien und wurden anschließend langsam in die obere Troposphäre geleitet um in den letzten beiden Tagen nach Westen Richtung Flugroute zu strömen. In den Tagen vor der Konvektion, also 10 – 6 Tage vor der Messung, war die Konvektion über Westindien sehr heterogen mit unterschiedlich hohen Wolkenobergrenzen, wie in Abbildung 4.20(c) vom 23.07.2015 über Westindien, speziell in dem Gebiet, welches von den Trajektorien überströmt wurde (ca. 15 – 23° N), zu sehen ist. EMAC hat in dem Be-



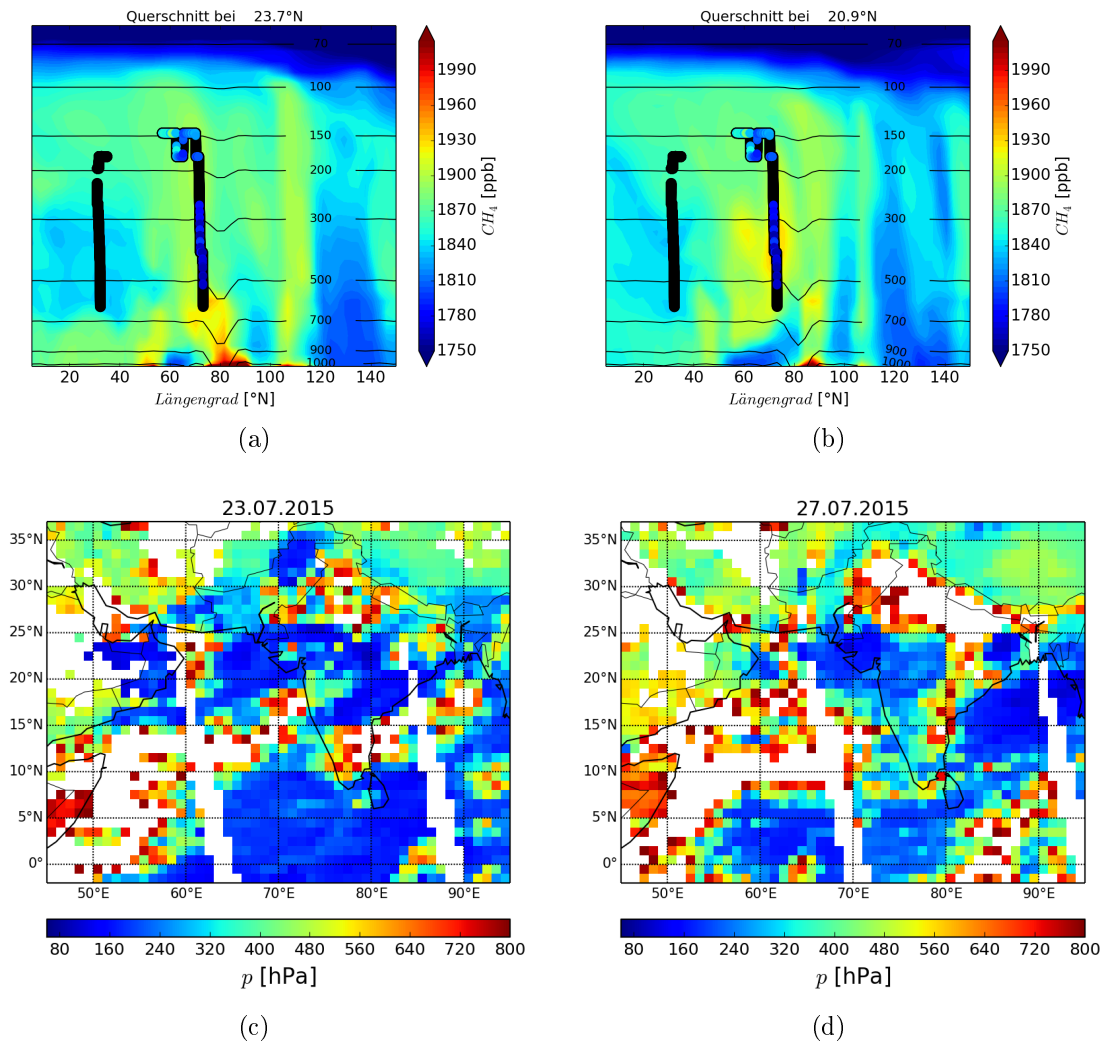


Abbildung 4.20.: Flug 11 (01.08.2015):  $CH_4$  in situ-Daten und EMAC-Tagesmittel entlang 23.7° N am 23.07.2015 (a) und 20.9° N am 27.07.2015 (b), Druck an der Wolkenobergrenze aus Satellitendaten vom 23.07.2015 (c) und 27.07.2015 (d).

reich keine starken Emissionen simuliert, wie im  $CH_4$ -Vertikalprofil vom 23.07.2015 entlang 23.7° N zu sehen ist (Abbildung 4.20(a)). Hier sind die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse vor allem in Westindien (ca. 70 – 80° E) am Boden niedrig und zeigen etwas höhere Werte zwischen 800 – 500 hPa. Südlich von 23.7° N sind die  $CH_4$ -Werte noch geringer. In den Tagen der Konvektion waren erhöhte  $CH_4$ -Werte nur in einem Gebiet östlich von ca. 85° E, wie beispielhaft im Vertikalprofil vom 27.07.2015 entlang 20.9° N dargestellt (Abbildung 4.20(b)). Damit lag das Gebiet östlich der Vertikalbewegung von den Trajektorien. Während des horizontalen Transports der Luftmassen vom Arabischen Meer über Westindien, ist das Windfeld in der unteren Troposphäre schwach ausgeprägt und nahm erst nach dem Durchziehen der Trajektorien zu. In der oberen Troposphäre war das Windfeld auch über den gesamten Zeitraum schwach ausgeprägt und gewann über der Indo-Ganges-Ebene erst ab dem 30.07.2015 an Stärke. Der aufgefrischte Wind kam dabei aus Nordosten,

sodass Luftmassen von dort mit der Zirkulation nach Westen transportiert werden konnten. Mit dieser Strömung geht ein Bereich mit leicht positiver Vorticity einher und die Luftmassen konnten während sie nach Westen strömten etwas weiter nach Süden vordringen um am 01.08.2015 südlich des Omans von HALO durchflogen zu werden. Der Tropenjet hatte sein Windmaximum dabei Richtung Süden verschoben bis ca.  $5^\circ$  N. Das schwache Windfeld in der oberen Troposphäre hat die Transportbarriere am AMA-Rand geschwächt, sodass sich die Luftmasse mit den erhöhten  $CH_4$ -Werten vom AMA-Rand aus weiter von der AMA entfernen konnte. Dieses Ausströmen hat am südwestlichen AMA-Rand stattgefunden. Dies ist nach Park et al. (2007) eine bevorzugte Position. Sie erklärten, dass es für Luftmassen einfacher ist am westlichen oder östlichen Rand der AMA herauszuffließen, da dort der Wind schwächer ist im Vergleich zum Nord-, bzw. Südrand der AMA. Damit kann die Transportbarriere der AMA leichter überwunden werden.

Die erhöhten Spurengasmischungsverhältnisse außerhalb der AMA und ihre Herkunft waren mittels Trajektorien und Modell schwierig nachzuvollziehen. Ein Grund kann die grobe Modellauflösung darstellen, welche hier verwendet wurde. Die Konvektion zeigte in den Satellitendaten eine heterogene Verteilung und während des Vertikaltransports der Trajektorien keine hochreichende Bewölkung, sodass der Transport der Luftmassen in die obere Troposphäre langsamer war als bei hochreichender konvektiver Bewölkung. Außerdem war das Windfeld sowohl in der unteren Troposphäre, als auch in der oberen Troposphäre schwach. Damit kann sein, dass die realen Prozesse leicht versetzt zu den simulierten stattfand und höhere Emissionen in die obere Troposphäre transportiert werden konnten. Ein weiterer Grund könnten auch die Rückwärtstrajektorien in Kombination mit dem Modell sein. In dem schwachen Windfeld der unteren Troposphäre könnten die Luftmassen, welche mit den Trajektorien mitgeführt wurden, durch den langsamen Transport stärker mit Emissionen angereichert werden. Das schwache Windfeld zeigte sich auch in den unterschiedlichen Verläufen der Trajektorien. Die verwendeten Schwerpunktstrajektorien könnten in diesem Fall das Einzugsgebiet der einzelnen Luftpartikel nicht repräsentativ wiedergeben. Folglich könnten die Luftmassen auch aus etwas anderen Gebieten kommen, welche stärkere Emissionen aufwiesen. Dennoch zeigte dieser Fall ein Ausströmen einer Luftmasse aus der AMA, bzw. ihrem Rand, wobei die Konvektion am südöstlichen AMA-Rand stattfand. Der Transportweg und die Aufnahme von Emissionen war durch die meteorologische Situation in der unteren Troposphäre schwer nachzuvollziehen. Dagegen konnte das Ausströmen aus der AMA auf Grund der Instabilitäten und der schwachen Gradienten in der oberen Troposphäre gut analysiert werden.

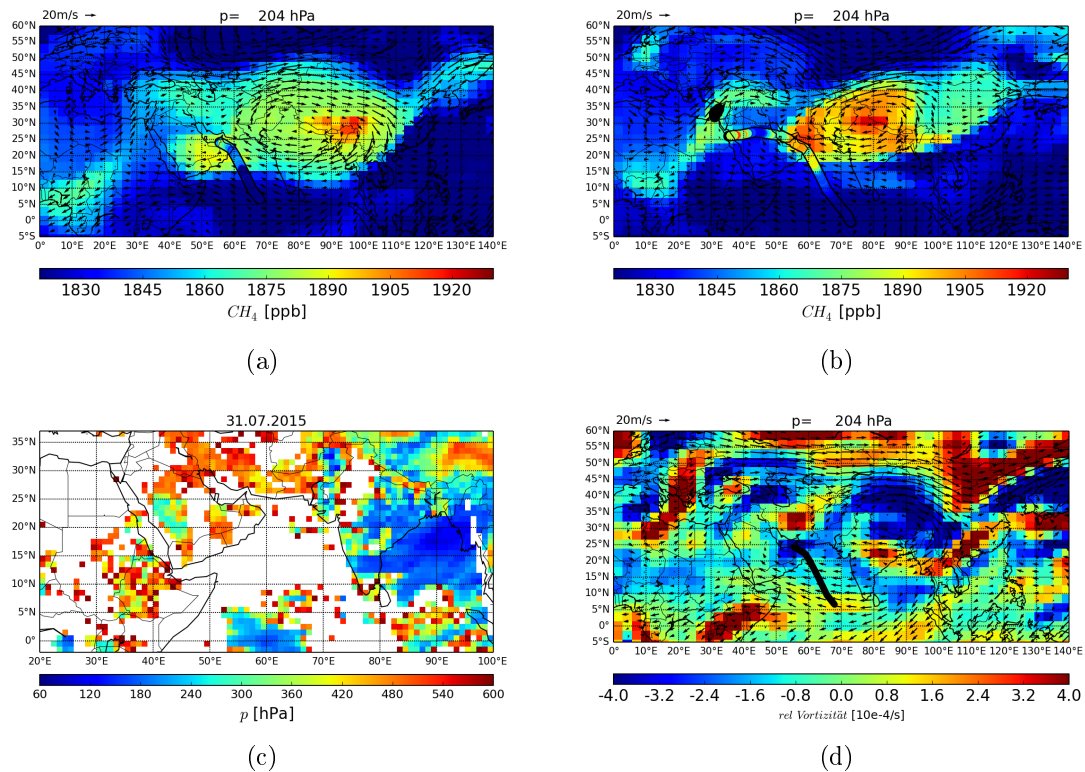


Abbildung 4.21.: Flug 12/13 (06.08.2015, a) und Flug 17/18 (10.08.2015, b): EMAC-Tagesmittel für  $CH_4$  auf 200 hPa mit der jeweiligen in situ-Messung entlang des Fluges, (c) Wolkenobergrenze aus Satellitendaten vom 31.07.2015, (d) EMAC-Tagesmittel für die relative Vorticity auf 200 hPa inklusive Windfeld vom 04.08.2015.

#### 4.5.2. Lagrange'scher Luftmassentransport

Während des zentralen Modes konnte mit den Flügen 12/13 und 17/18 ein Lagrange'scher Luftmassentransport beobachtet werden, bei dem eine Luftmasse zunächst aus der AMA herausströmte. Sie wurde als separater Bereich mit erhöhten  $CH_4$ -Mischungsverhältnissen bei Flug 12/13 am 06.08.2015 über dem Oman durchflogen und am 10.08.2015 während Flug 17/18 über dem Roten Meer von HALO durchquert.

Das AMA-Zentrum lag nordöstlich der Flugrouten über der Kaschmirregion (siehe Kapitel 4.4). In den EMAC-Tagesmitteln für  $CH_4$  am 06.08.2015 ist ein Bereich höherer Mischungsverhältnisse südwestlich der AMA zu erkennen (Abbildung 4.21(a)). Die in situ-Mischungsverhältnisse waren für  $CH_4$   $1893.5 \pm 9.8$  ppb und für  $CO$   $117.3 \pm 22.2$  ppb. Für den 10.08.2015 (Abbildung 4.21(b)) wurden erhöhte  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse über dem Oman und über dem Roten Meer gemessen. Diese Bereiche wurden auch von EMAC simuliert. Der östliche Bereich ist im Randbereich der AMA und der westliche Bereich ist von der AMA abgekoppelt. Die gemessenen Mischungsverhältnisse waren in der AMA  $1911.3 \pm 12.4$  ppb für  $CH_4$  und  $99.8 \pm 7.6$  ppb für  $CO$  und in der abgekoppelten Luftmasse  $1903.7 \pm 19.2$  ppb für  $CH_4$  und  $94.2 \pm 6.8$  ppb für  $CO$ . Beide Spurengase weisen damit höhere Werte

in der AMA auf als in der abgekoppelten Luftmasse.

Die erhöhten  $CH_4$ -Werte zeigten sich ab dem 26.07.2015 in der oberen Troposphäre auf 200 hPa über Bangladesch. Diese Region zählt nach Bergman et al. (2013) zu den Hauptkonvektionsgebieten. Diese Position entsprach in der oberen Troposphäre dem südöstlichen Rand der AMA und spiegelt somit die favorisierte Stelle in der AMA für Konvektion wider (Park et al. (2007)). Das Gebiet der Konvektion ist auch in den Satellitenbildern zu erkennen, wie in Abbildung 4.21(c) beispielhaft für die Wolkenobergrenze am 31.07.2015 dargestellt ist. Ab dem 02.08.2015 begann der horizontale Transport der erhöhten  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse aus dem Emissionsgebiet nach Westen. In Vertikalprofilen simuliert EMAC Mischungsverhältnisse am Boden für  $CH_4$  von ca. 2500 ppb und für  $CO$  von ca. 510 ppb im Bereich der Konvektion. Von dort zieht die Luftmasse mit den erhöhten Spurengasmischungsverhältnissen am südlichen Rand der Antizyklone Richtung Westen und wird dabei von positiver relativer Vorticity begleitet. Die AMA-Zirkulation ist im Zeitraum 04. – 05.08.2015 am südwestlichen Rand schwach ausgeprägt (Abbildung 4.21(d)). In dem Bereich des schwachen Windfeldes ist auch die relative Vorticity homogen mit leicht negativen Werten, sodass die Transportbarriere der AMA dort nicht stark ausgeprägt ist. An der Südflanke der AMA zeigte die relative Vorticity hingegen positive Werte. Diese wurden in den folgenden Tagen nach Westen transportiert. Mit ihr konnte auch die Luftmasse an den Rand der AMA driften und wurde nicht weiter in der Antizyklone festgehalten. Im Tropenjet eingegliedert, wurde sie weiter in den Westen transportiert. Am 06.08.2015 ist die Luftmasse vollständig von der AMA abgelöst und über dem Südosten der Arabischen Halbinsel lokalisiert, was in Abbildung 4.21(a) zu sehen ist. Außerdem hat sich zeitgleich die AMA-Zirkulation verstärkt und damit auch die Transportbarriere. In Abbildung 4.22(a) ist das Konvektionsgebiet über Bangladesch am 06.08.2015 in dem Vertikalschnitt entlang des  $26.5^\circ$  N Breitengrades für  $CH_4$  zu sehen. Die Konvektion ist weiterhin aktiv und transportiert weiter verschmutzte Luftmassen in die obere Troposphäre. In der Abbildung ist außerdem die Flugroute von Flug 12/13 zu sehen, welche durch die ausgeströmte Luftmasse in der oberen Troposphäre verläuft. Anschließend wurde die ausgeströmte Luftmasse weiter nach Westen transportiert. Dieser Transport in der oberen Troposphäre ist in Abbildung 4.22(b) am 10.08.2015 zu sehen. Im Vergleich zum 06.08.2015 sind die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse um den  $30 - 40^\circ$  E Längengrad auf ca. 200 hPa erhöht. Des Weiteren ist die Konvektion innerhalb der AMA zu sehen, welche mit der Höhe nach Westen transportiert wird. Der Transport der abgekoppelten Luftmasse über der Arabischen Halbinsel wurde von positiver Vorticity begleitet. Um den 08.08.2015 herum wurde sie von einem Südwestwind über dem östlichen Nordafrika erfasst und nach Nordosten abgelenkt. Durch das Ablenken wurde die Luftmasse gedehnt und war nicht mehr so kompakt wie vorher. Am 10.08.2015 wurde die Luftmasse erneut in der Region des Roten Meeres von HALO durchflogen. Im weiteren Verlauf wurde

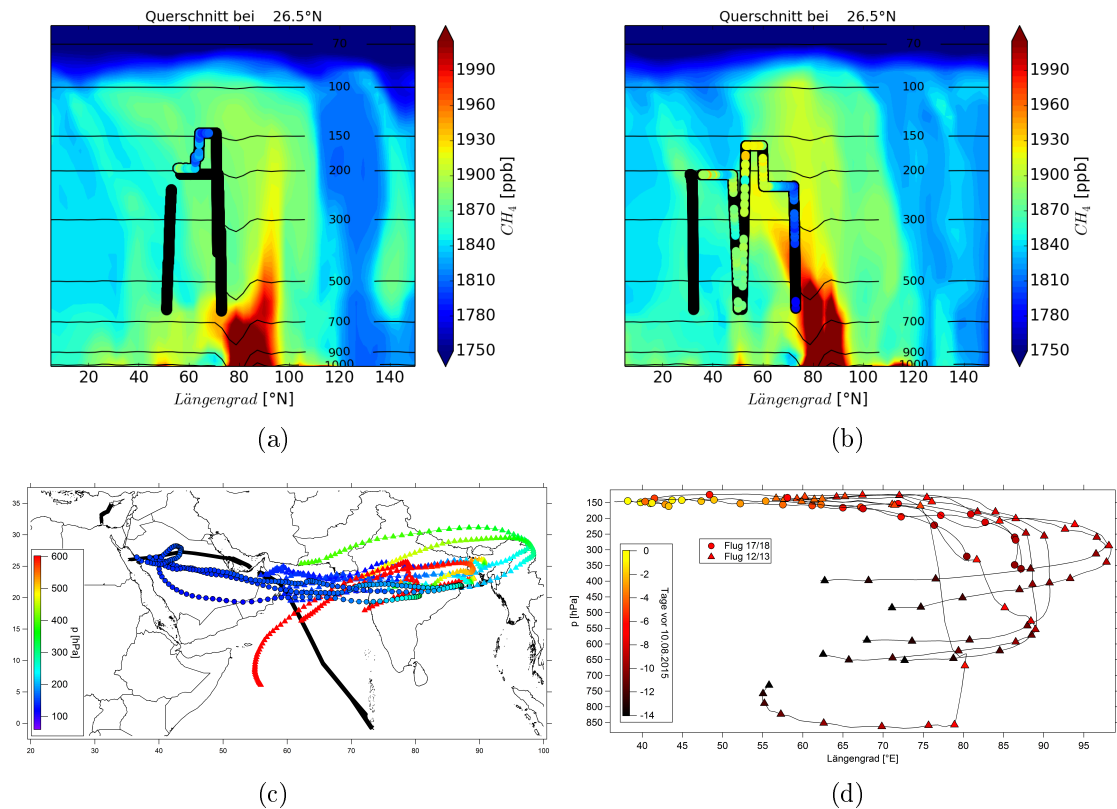


Abbildung 4.22.: Flug 12/13 (06.08.2015) und Flug 17/18 (10.08.2015): EMAC-Vertikalprofil für  $CH_4$  entlang 26.5° N am 06.08.2015 (a) und am 10.08.2015 (b), (c) Rückwärts-trajektorien mit farbkodiertem Druck und (d) Transportdauer der Rückwärtstrajektorien vom Quellgebiet bis zur Messung.

sie über den Subtropenjet wieder nach Osten transportiert. In Abbildung 4.21(b) ist zu erkennen, dass EMAC die Luftmasse schon weiter nach Westen transportiert hat, während sie ihre östliche Grenze in den in situ-Daten noch über der Arabischen Halbinsel hatte. In den horizontalen EMAC-Tagesmitteln auf 200 hPa für  $CO$  ist der Luftmassentransport ebenfalls zu sehen. Zudem ist die geographische Übereinstimmung zwischen erhöhten in situ- $CO$ -Werten und EMAC-Simulation besser, dank der überschätzten  $CO$ -Werte durch EMAC (Abbildung A.8(b)). Generell ist die geographische Übereinstimmung zwischen Modell- und in situ-Daten am 06.08.2015 besser als am 10.08.2015.

In Bezug auf die  $CO$ - und  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse ergibt sich ein inkonsistentes Bild, da die  $CH_4$ -Werte von Flug 12/13 auf Flug 17/18 zunahmen, während die  $CO$ -Werte abnahmen. Diese Unterschiede sind allerdings innerhalb der Standardabweichungen und damit nicht signifikant. Der Unterschied im  $CH_4$  könnte mit der Position von HALO innerhalb der Luftmasse erklärt werden. HALO hat beim ersten Durchfliegen eventuell nicht die maximalen Mischungsverhältnisse gemessen, da es in Bezug auf die EMAC-Simulation die Luftmasse an einer Position mit geringeren Mischungsverhältnissen durchflog. Beim zweiten Durchfliegen hat HALO eine Querung der Luftmasse bei höheren Werten durchgeführt. Der gegenläufige Unter-

schied in  $CO$  passt nicht zu den  $CH_4$ -Daten. Allerdings ist die Standardabweichung für  $CO$  während Flug 12/13 sehr hoch, so dass eine Vermutung hinsichtlich einer  $CO$ -Abnahme durch Oxidationsprozesse, wie in Kapitel 4.4.3 beschrieben, sehr wage ist. Zudem gibt es einen Höhenunterschied in den Messungen, da HALO während Flug 12/13 auf 11.9 km war und bei Flug 17/18 auf 12.4 km. Dieser Unterschied könnte auch die verschiedenen  $CO$ - und  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse erklären, jedoch liegen diese Vermutungen innerhalb der Messungenauigkeiten, sodass eine weitere Analyse nicht möglich ist.

Um den Lagrange'schen Transport genauer nachzuweisen, werden die Rückwärts-trajektorien der beiden Flüge betrachtet. Zunächst ist in Abbildung 4.22(c) eine geographische Übereinstimmung der Trajektorien über dem indischen Subkontinent für die erhöhten  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse mit einer geringen meridionalen Erstreckung auszumachen. Die Trajektorien von Flug 17/18 überstreifen die Flugroute von Flug 12/13 in dem Bereich, der die höchsten  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse zeigte. In Abbildung 4.22(d) werden diese meridional eng beieinander liegenden Trajektorien in einem Diagramm entlang des Längengrades gegen den Druck dargestellt. Zusätzlich werden die Tage ab Flug 17/18 zurück gezählt. Flug 12/13 hat am Tag  $-4$  vor Flug 17/18 stattgefunden, dementsprechend zeigen diese Trajektorien bis zu  $-14$  Tage zurück. Die zeitliche Farbkodierung der Trajektorien beider Flüge stimmen in Bezug auf den Druck, den Zeitpunkt und den Längengrad bis ca.  $-10 - -8$  Tage zurück überein. Weiter zurück zeigen die einzelnen Trajektorien Unterschiede in den Zugbahnen. Anhand der Trajektorien konnte eine zeitliche Übereinstimmung für die Transportwege aus beiden Flügen ermittelt werden, sodass sie wahrscheinlich die gleiche Luftmasse repräsentieren. Dies passt zu dem oben beschriebenen Verlauf der Luftmasse vom Konvektionsgebiet bis zu den Flugrouten anhand der EMAC-Tagesmittel.

Dieses Ausströmen aus der Antizyklone stellt eine Situation dar, bei der eine Luftmasse aus einem typischen Ursprungsgebiet durch Konvektion in die AMA in der oberen Troposphäre transportiert und anschließend aus dieser wieder heraus geleitet wurde. Im Vergleich zum vorangegangenen Fall war die Konvektion hier stärker, da die Konvektion im Verlauf von OMO zugenommen hat, wie in Kapitel 4.4 beschrieben. Außerdem verliefen die Trajektorien hier näher am AMA-Zentrum als für Flug 11 (Kapitel 4.5.1). Der Lagrange'sche Transport außerhalb der AMA konnte sowohl in den in situ-Daten, als auch in den EMAC-Daten beobachtet werden. Außerdem konnte mit dieser Luftmasse gezeigt werden, wie sich Luftmassen in der oberen Troposphäre ausbreiten können, wenn sie die Transportbarriere der AMA überwinden. Dies hat zur Folge, dass sich der AMA-Einfluss über größere Gebiete ausbreiten kann, auch außerhalb der typischen Positionen der AMA. Hier befindet sich die Position der AMA im klimatologischen Mittel (Nützel et al. (2016)). Bei einer westlicheren AMA-Lage könnte eine Luftmasse noch weiter nach Westen außer-

halb der AMA transportiert werden und Gebiete westlich des östlichen Mittelmeeres beeinflussen. Der hier beschriebene Transport kann für Betrachtungen chemischer Prozesse in der oberen Troposphäre wichtige Aufschlüsse liefern, vor allem im Hinblick auf weitere Spurengase, wie sie während OMO gemessen wurden.

### 4.5.3. Konvektion südlich der AMA

Mit Flug 20 am 15.08.2015 wurde ein weiterer Fall für Konvektion beobachtet, der außerhalb der AMA stattfand. Die Situation wurde während des tibetischen Modes beobachtet. Die AMA hatte sich von ihrer Westerstreckung am 13.08.2015 (Abbildung 4.13) zurückgezogen, da sie durch Störungen im Subtropenjet beeinflusst wurde. Ein Höhenkeil mit einer potentiellen Temperatur von 337 K propagierte von West nach Ost und schob dabei einen Trog mit einer potentiellen Temperatur von 362 K vor sich her. Dieser Trog reichte bis an den nördlichen Rand der AMA, sodass der Keil in seiner Bewegung blockiert wurde und leicht nach Süden auswich. Dies hatte zur Folge, dass er die nach Westen ausgedehnte AMA nach Osten zurückdrängte. Die Zirkulation der AMA war am 15.08.2015 somit nur noch über der Tibetischen Hochebene positioniert (Abbildung 4.23(a)). In der simulierten  $CH_4$ -Verteilung war noch ein Ausläufer mit leicht höheren Mischungsverhältnissen als im Hintergrund im Westen zu erkennen. Dieser ist verantwortlich für die  $CH_4$ -Werte von  $1932.7 \pm 11.2$  ppb, welche über dem Oman gemessen wurden. Die dazugehörigen Rückwärtstrajektorien haben ihren Ursprung in der AMA (Abbildung A.10(d)). Ein zweites  $CH_4$ -Niveau oberhalb des Schwellwertes wurde mit Werten von  $1901.6 \pm 9.6$  ppb über der Arabischen Halbinsel westlich des Omans gemessen. Wegen Laserproblemen gab es für Flug 20 keine  $CO$ -Messungen.

Das zweite niedrigere  $CH_4$ -Niveau lässt sich mit Konvektion außerhalb der AMA erklären. Hierzu wurden zunächst Rückwärtstrajektorien in Abbildung 4.23(c) betrachtet. Die Trajektorien hatten ihren Ursprung in der freien Troposphäre über dem Arabischen Meer und zogen zwischen  $13 - 20^\circ$  N mit der typischen Monsunströmung in der unteren Troposphäre, einem Südwestwind (Lawrence and Lelieveld (2010)), über den indischen Subkontinent bis in den Golf von Bengalen. Dort stiegen sie ca. 5 Tage vor der Messung konvektiv auf (Abbildung 4.23(d)). Die Konvektion kann in den Wolkenobergrenzen der Satellitendaten beobachtet werden, wie in Abbildung 4.24(d) für den 11.08.2015 dargestellt. Von dort strömten die Trajektorien mit dem Tropenjet nach Westen über die Arabische Halbinsel. Über dem indischen Subkontinent werden um den 12.08.2015 nur leicht höhere  $CH_4$ -Werte im EMAC-Tagesmittel als in der Umgebung dargestellt. Diese Werte passen nicht zu den gemessenen  $CH_4$ -Mischungsverhältnissen, im Gegensatz zu den beiden vorherigen Fällen, in denen

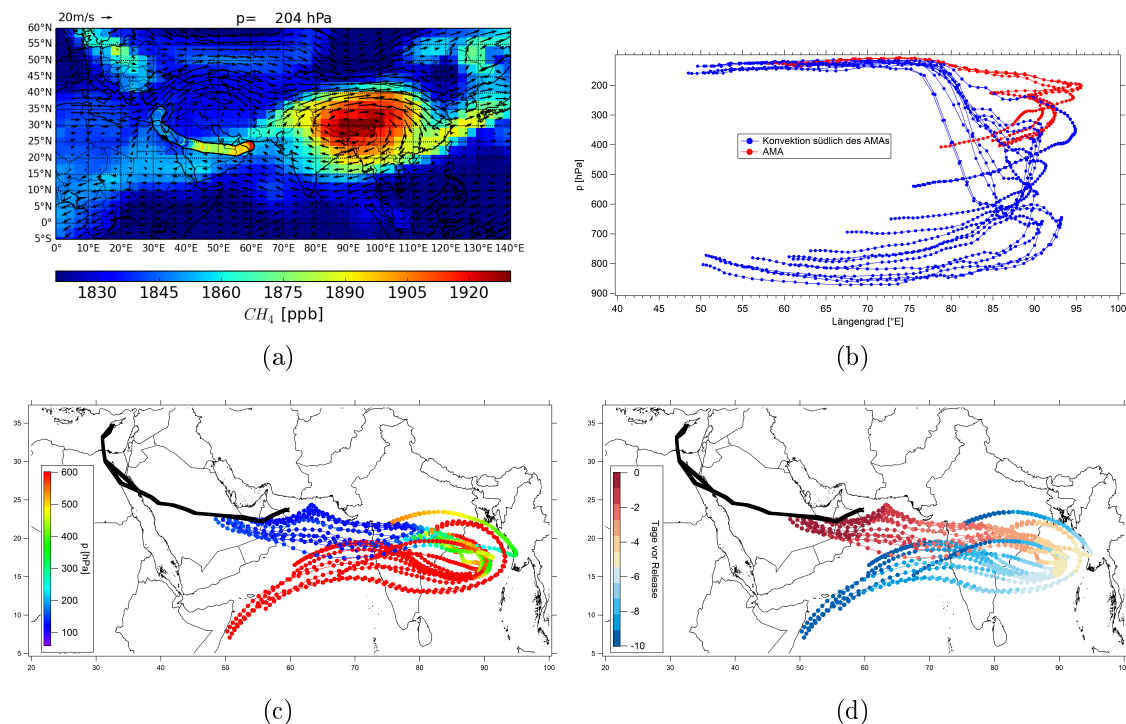


Abbildung 4.23.: Flug 20 (15.08.2015): (a)  $CH_4$ : in situ-Messungen entlang der Flugroute und EMAC-Tagesmittel auf 200 hPa, (b) Rückwärtstrajektorien entlang des Längengrades gegen den Druck; Rückwärtstrajektorien mit farbkodiertem Druck (c) und farbkodierter Zeit (d).

EMAC durch Konvektion höhere  $CH_4$ -Werte in der oberen Troposphäre simulierte. Der Transport dieser Luftmasse in der oberen Troposphäre kann mit EMAC dennoch nachvollzogen werden, vor allem unter Berücksichtigung der relativen Vorticity. Zunächst ist leicht positive Vorticity über dem östlichen Indien und dem Golf von Bengalen, also dem Konvektionsgebiet der Trajektorien, zu erkennen. Dabei wurde die Luftmasse über dem Golf von Bengalen in den Tropenjet eingelagert und strömte anschließend südlich der AMA mit ihm nach Westen. Über dem Arabischen Meer nahm die Vorticity ab und wurde negativ. Sie strömte anschließend mit antizyklonaler Orientierung zusammen mit dem Tropenjet Richtung Flugroute. Über dem Golf von Bengalen wurde keine starke Emission von EMAC simuliert. In dem Vertikalprofil entlang des  $20.9^\circ$  N vom 11.08.2015 (Abbildung 4.24(b)) zeigte EMAC in einem Bereich zwischen  $85 - 100^\circ$  E erhöhte  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse nur unterhalb von 900 hPa. Das Profil repräsentiert die Situation in den Tagen, in denen die Trajektorien konvektiv nach oben transportiert wurden. EMAC hat dabei keinen vertikalen Transport von erhöhten  $CH_4$ -Werten in die obere Troposphäre simuliert. Während des horizontalen Transports der Trajektorien in der oberen Troposphäre zwischen dem Golf von Bengalen und der Arabischen Halbinsel hat Konvektion über Indien stattgefunden. In Abbildung 4.24(d) sind am 11.08.2015 hochreichende Wolken über dem Golf von Bengalen und über Nordindien zu sehen. In Westindien zwischen  $15 - 25^\circ$  N reichten die Wolken nicht in die obere Troposphäre. In diesem



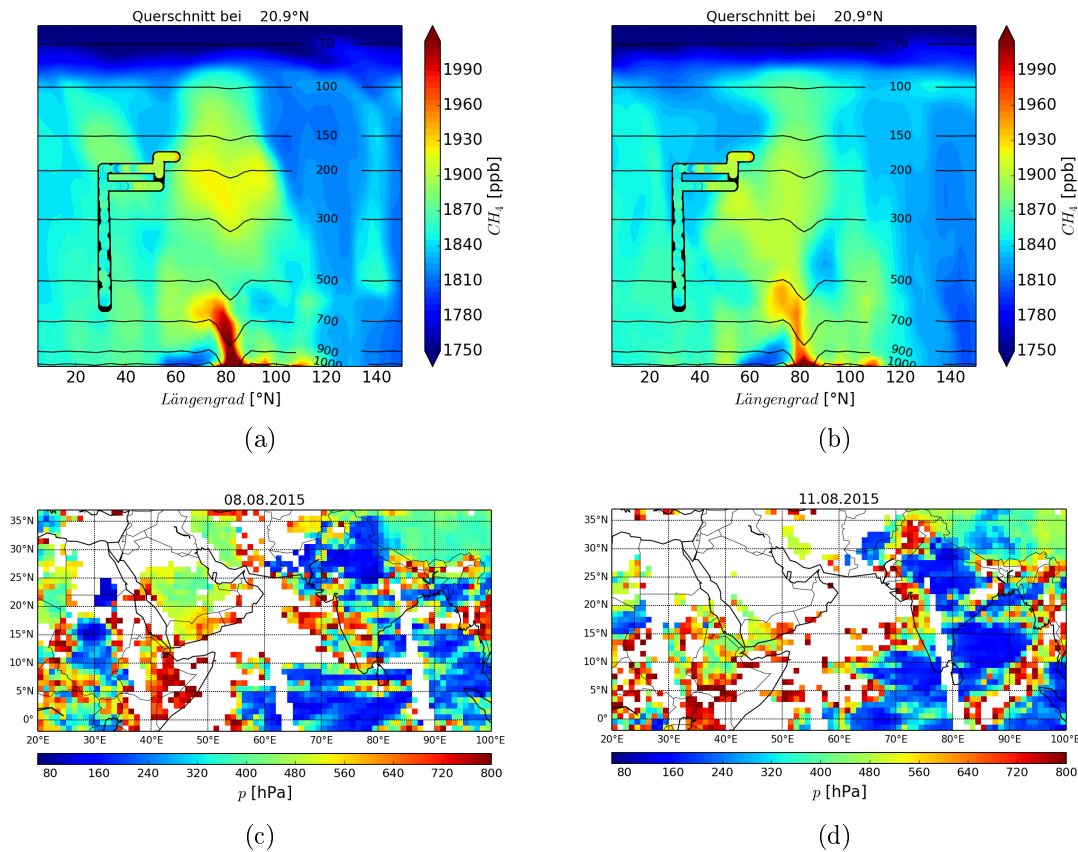


Abbildung 4.24.: Flug 20 (15.08.2015):  $CH_4$ : in situ-Messungen für den Flug 20 und  $CH_4$ -Vertikalprofil für EMAC-Tagesmittel entlang 20.9° N vom 08.08.2015 (a) und 11.08.2015 (b); Wolkenobergrenze aus Satellitendaten vom 08.08.2015 (c) und 11.08.2015 (d).

Zeitraum ziehen die Trajektorien in der oberen Troposphäre über diesen Bereich. Folglich sind sie nicht von der darunterliegenden Konvektion beeinflusst, sodass diese Konvektion als Emissionsquelle für die Trajektorien vernachlässigt werden kann. Die Aufnahme von emittierten Spurengasen muss daher vorher stattgefunden haben. Dies könnte während des Transports über den indischen Subkontinent vom Arabischen Meer Richtung Osten geschehen sein. Die Zugbahn der Trajektorien war auf einem Drucklevel von 870 – 650 hPa (Abbildung 4.23(b)). Dabei passierten sie ein Konvektionsgebiet über Indien, wie in dem Vertikalprofil in Abbildung 4.24(a) entlang des 20.9° N am 08.08.2015 gezeigt wird. Diese Konvektion reichte nicht bis in die obere Troposphäre, sondern nur bis zu einer Druckhöhe von maximal 500 hPa (Abbildung 4.24(c)), und wird somit nicht als direkte Emissionsquelle für die obere Troposphäre von EMAC simuliert. Die  $CH_4$ -Spitzenwerte an der Oberfläche wurden von EMAC auf ca. 2500 ppb kalkuliert. In Vertikalprofilen südlich von 20.9° N nehmen sowohl die Konvektionshöhe, als auch die Spitzenwerte für  $CH_4$  ab. Dieser Nordsüdtrend in den  $CH_4$ -Mischungsverhältnissen wurde unter anderem von Kavitha and Nair (2016) und Girach et al. (2017) beschrieben. Die  $CH_4$ -Werte sind im Nordhemisphärensommer in Südindien geringer als in Zentral-, bzw. Nordindien.

Die mit Emissionen angereicherten Luftmassen zogen mit den Trajektorien über den Golf von Bengalen. Dort wurden sie vertikal in die obere Troposphäre transportiert. Die Konvektion über dem Golf von Bengalen ist im August stark und liegt südlich des Konvektionsgebietes, welches die AMA speist (Bergman et al. (2013)). Anschließend strömten die Trajektorien mit dem Tropenjet bis über die Arabische Halbinsel, wo sie von HALO beprobt wurden. Dieser Transportweg ist nicht direkt im Vergleich zu den Haupttransportwegen von Ursprungsregionen, wie Nordostindien, Indo-Ganges-Ebene und Bangladesch, in die AMA, wie in Kapitel 4.1.5 beschrieben. Mittels horizontaler Verlagerung von Emissionen in Gebiete mit Konvektion ist es dennoch möglich, dass Luftmassen in die obere Troposphäre außerhalb ihrer Quellregion gelangen. Girach et al. (2017) berichten von einem horizontalen Transport von Spurengasen, wie  $CO$  und  $CH_4$ , vom indischen Subkontinent in den Golf von Bengalen während einer Schiffskampagne im Sommer 2009. Hierbei wurden höhere  $CH_4$ -Werte gemessen, wenn die Luftmassen aus Nord-, bzw. Zentralindien kamen im Vergleich zu Luftmassen aus Südindien. Dieser Unterschied passt zu den Messungen von Flug 20. Die niedrigeren Mischungsverhältnisse des zweiten  $CH_4$ -Niveaus stammten von Trajektorien, welche über ein südlicheres Gebiet in Indien zogen, während die höheren  $CH_4$ -Werte über dem Oman aus der AMA und daher aus einem nördlicheren Gebiet stammten, wie oben erwähnt wurde.

Die Emissionen des zweiten  $CH_4$ -Niveaus von Flug 20 wurden, wie im ersten Fall (Kapitel 4.5.1), ebenfalls nicht über das typische Konvektionsgebiet am Südostrand der AMA in die obere Troposphäre geleitet (Park et al. (2007)). Die Trajektorien wurden mit dem Südostwind vom Arabischen Meer Richtung Indien bis über den Golf von Bengalen geleitet. Über Indien wurden diese von Emissionen beeinflusst und transportierten folglich erhöhte Spurengasmischungsverhältnisse mit sich mit. Der indische Subkontinent liegt als Emissionsquelle außerhalb des typischen Konvektionsgebiets für die AMA, weil er nicht unterhalb des Kamins liegt (Bergman et al. (2013)). Dennoch können Emissionen aus Zentralindien mit einem Südwestwind in das Konvektionsgebiet der AMA transportiert werden. Oder wie hier, einem stärkeren zonalen Wind ausgesetzt sein, sodass sie horizontal bis in den Golf von Bengalen strömten und somit südlich der AMA in einen konvektiv aktiven Bereich gelangt sind. Dort strömten sie vertikal in die obere Troposphäre und anschließend mit dem Tropenjet nach Westen.

Für die Analyse des hier beschriebenen Transportweges von Luftmassen mit erhöhten Spurengaskonzentrationen von der Oberfläche bis in die obere Troposphäre, war eine Kombination verschiedener Werkzeuge, wie globales Modell und Trajektorien, notwendig. Dieser Transportweg von Emissionen in die obere Troposphäre trägt ebenfalls zur Veränderung der chemischen Zusammensetzung in der oberen Troposphäre bei. Allerdings wurde dieser von EMAC nicht aufgelöst, sondern nur leicht angedeutet. Die Konvektionen mit einhergehendem Vertikaltransport von Emissio-

nen wurde über Land von EMAC gut simuliert und passt je nach Stärke der Konvektion auch zu den Wolkenobergrenzen aus den Satellitendaten. Die Konvektion über dem Ozean ist in den EMAC-Daten auf Grund geringerer Oberflächenemissionen nicht so gut zu erkennen. Der horizontale Transport von Emissionen wurde in der unteren Troposphäre kaum von EMAC aufgelöst. Dies könnte an der globalen Auflösung des Modells liegen. Eine genauere Untersuchung der Differenz zwischen Modell- und in situ-Messungen für solche Fälle liegt außerhalb des Fokus dieser Arbeit. Die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse sind geringer als bei direktem AMA-Einfluss. Ein weiterer Aspekt ist die Auswirkung der Ursprungsregionen und der Transportwege auf andere Spurengase. Folglich sollten solche Transportwege weiter untersucht werden, um ihren Einfluss auf die obere Troposphäre zu verstehen.

## 4.6. Fallstudien

### 4.6.1. Konvektionsgebiet am westlichen AMA-Rand

Auf der Route von Flug 11 am 01.08.2015 wurde neben dem AMA-Einfluss auch eine Luftmasse durchquert mit  $CH_4$ -Werten von  $1852.5 \pm 5.0$  ppb und  $CO$ -Werten von  $99.0 \pm 2.7$  ppb. Diese Luftmasse war über dem Oman, wo EMAC erhöhte  $CH_4$ -Werte simuliert hat (Abbildung 4.25(a)). Somit könnte sie vom Monsun beeinflusst gewesen sein, wie der in Kapitel 4.5.1 beschriebene AMA-Einfluss südlich des Omans auf dem gleichen Flug zeigt, obwohl die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse hier unterhalb des Schwellwertes lagen. Die meteorologische Situation für Flug 11 wurde sowohl in Kapitel 4.4, als auch in Kapitel 4.5.1 beschrieben. In der Übergangsphase zwischen zwei Antizyklonen zu einer Antizyklone war das Windfeld in der oberen Troposphäre schwach ausgeprägt, sodass der Transport von Emissionen aus der AMA in ihre Umgebung leichter war, da die Transportbarriere geschwächt war. Während des Übergangsprozesses hat Konvektion ca. 9 – 4 Tage vor Flug 11 über Nordwestindien stattgefunden, wie anhand der hochreichenden Bewölkung in Abbildung 4.25(b) für den 28.07.2015 zu sehen ist. In den EMAC-Tagesmitteln auf 200 hPa zeigten sich über dem gleichen Gebiet in den Tagen vor der Messung erhöhte  $CH_4$ - und  $CO$ -Werte, welche auf einen Vertikaltransport verschmutzter Luftmassen in die obere Troposphäre hinweisen. Dies wird in Vertikalprofilen entlang des  $26.5^\circ$  E Breitengrades bestätigt. Zunächst war die hochreichende Konvektion anhand von  $CH_4$  in einem Bereich zwischen  $70 - 90^\circ$  E zu beobachten, wie in Abbildung 4.25(c) vom 24.07.2015 zu sehen. Dabei hat EMAC Spitzenwerte an der Oberfläche von ca. 2300 ppb für  $CH_4$  und 450 ppb für  $CO$  simuliert. Anschließend simulierte EMAC

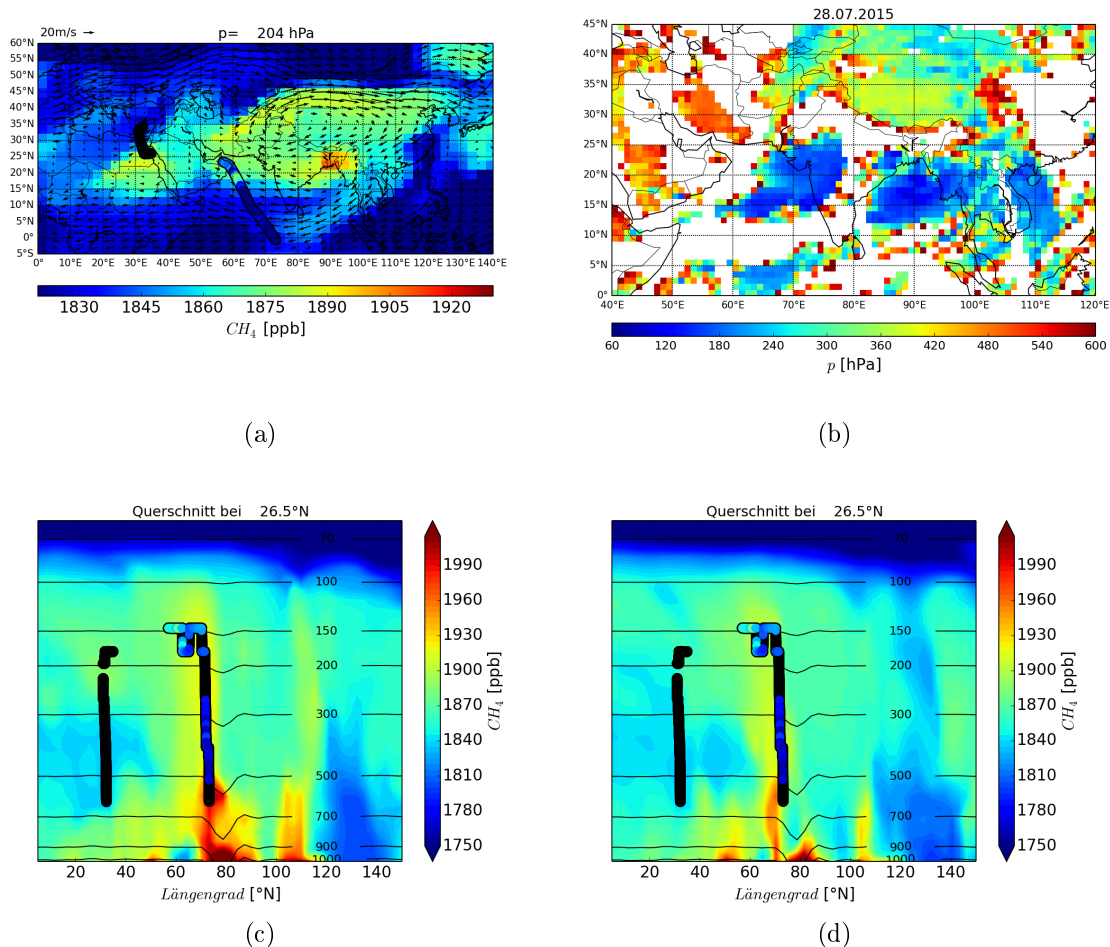


Abbildung 4.25.: Flug 11 (01.08.2015): (a)  $CH_4$  in situ-Daten und EMAC-Tagesmittel auf 200 hPa, (b) Druck an der Wolkenobergrenze aus Satellitendaten vom 28.07.2015 mit Konvektion über Ostindien und vor allem über Nordwestindien.  $CH_4$  in situ-Daten und EMAC-Tagesmittel entlang 26.5° E am 24.07.2015 (c) und am 28.07.2015 (d).

ein Abheben der Luftmasse vom Boden um den 70° E Längengrad vom 28.07.2015 auf den 29.07.2015 (Abbildung 4.25(d)). Danach wurde die Luftmasse ohne weiteren Einfluss von Emissionen vertikal nach oben transportiert. In dem gesamten Zeitraum war auch das Windfeld in der oberen Troposphäre in dem Gebiet schwach ausgeprägt und gewann erst ab ungefähr dem 29.07.2015 an Stärke. Park et al. (2007) erklären, dass es für Luftmassen einfacher ist am westlichen oder östlichen Rand der AMA herauszuffießen, da dort der Wind schwächer ist im Vergleich zum Nord-, bzw. Südrand der AMA. Die Umstrukturierung der großräumigen Zirkulation in der oberen Troposphäre, also der Übergang von zwei auf eine Antizyklone, sorgte für Instabilitäten. Diese wurden durch eine Störung im Subtropenjet verursacht, wie in Kapitel 4.4.2 beschrieben. Diese Art von Störungen in den mittleren Breiten, welche sich auf die potentielle Vorticity der AMA auswirken, wurden in Dethof et al. (1999) beschrieben. Eine Luftmasse kann sich somit je nach Position relativ zur AMA in der oberen Troposphäre weiter verteilen. Damit geht auch die Verteilung von Spurengasen einher. Die Konvektion fand am südwestlichen Rand der AMA

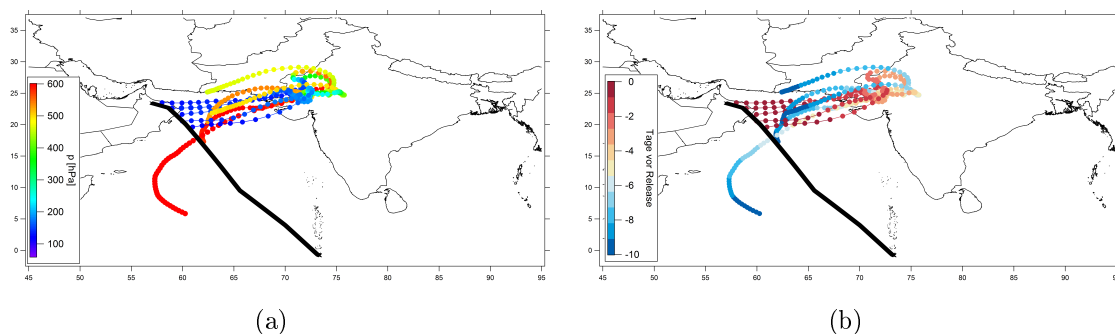


Abbildung 4.26.: Flug 11 (01.08.2015): Rückwärtstrajektorien für aus dem Konvektionsgebiet in Nordwestindien stammenden Trajektorien dargestellt mit farbkodiertem Druck (a) und farbkodierter Zeit (b).

statt. Zusätzlich spaltete sich das neu entstandene Windfeld über dem Konvektionsgebiet in die AMA-Zirkulation und den Tropenjet auf. In diesem Fall wurde die Luftmasse aus dem Konvektionsgebiet zu einem Teil nach Norden abgelenkt und floss in die AMA ein und zum anderen Teil strömte sie mit dem Tropenjet Richtung Westen. Der Luftmassentransport mit dem Tropenjet wurde mit der relativen Vorticity bestätigt. Über dem Konvektionsgebiet war zunächst (um den 29.07.2015) negative Vorticity in der oberen Troposphäre vorzufinden, welche sich im Verlauf der Tage abschwächte. In Richtung Westen wurde die Vorticity positiv, sodass die Luftmasse mit den Emissionen teilweise aus der AMA in Richtung Flugroute fließen konnte. Die Konvektion wurde auch von FLEXPART simuliert. In Abbildung 4.26(a) ist das Konvektionsgebiet über Nordwestindien auch in den Trajektorien zu erkennen. Durch das schwache Windfeld in diesen Tagen dauerte der horizontale Transport in der oberen Troposphäre vom Konvektionsgebiet über Nordwestindien zur Flugroute über dem Oman ca. 3 Tage (Abbildung 4.26(b)). Die Trajektorien hatten ihren Ursprung über dem nördlichen Arabischen Meer und flossen dann in östliche Richtung in das Konvektionsgebiet.

Die durchflogene Luftmasse über dem Oman stellt eine Möglichkeit dar, wie Emissionen aus der unteren Troposphäre in die obere Troposphäre gelangen und in Verbindung mit Instabilitäten der Zirkulation in der oberen Troposphäre auch außerhalb der AMA vorzufinden sind. Im Gegensatz zum in der Literatur häufig beschriebenen konvektiven Transport am östlichen, bzw. südöstlichen AMA-Rand (Park et al. (2007)), fand die Konvektion in diesem Fall am südwestlichen AMA-Rand statt. Der Vertikaltransport für verschmutzte Luftmassen in Regionen außerhalb der Hauptkonvektionsgebiete beeinflusst ebenfalls die chemische Zusammensetzung in der oberen Troposphäre. Hier wurde der Transport in die obere Troposphäre von EMAC aufgelöst, da die Konvektion stark genug war, um bis in die obere Troposphäre zu gelangen. Allerdings war die Konvektion über Nordwestindien im Vergleich zum typischen Konvektionsgebiet schwächer, sodass die Mischungsverhältnisse, welche gemessen wurden, unterhalb des  $CH_4$ -Schwellwertes lagen. Wie stark der Einfluss

einer solchen Konvektion und der damit verbundene Transport von verschmutzten Luftmassen in die obere Troposphäre ist, kann hier nicht beantwortet werden. Allerdings wird er die Chemie in der oberen Troposphäre außerhalb der AMA beeinflussen, vor allem bei stärkerer Konvektion. Solche Ereignisse sollten mit der AMA verglichen werden, um ihren Einfluss auf die obere Troposphäre im Verhältnis zur AMA abschätzen zu können. Je nach Region für die Konvektion kann sich auch die chemische Zusammensetzung der Emissionen und folglich die Chemie in der oberen Troposphäre verändern.

#### 4.6.2. Südhemisphäreneinfluss

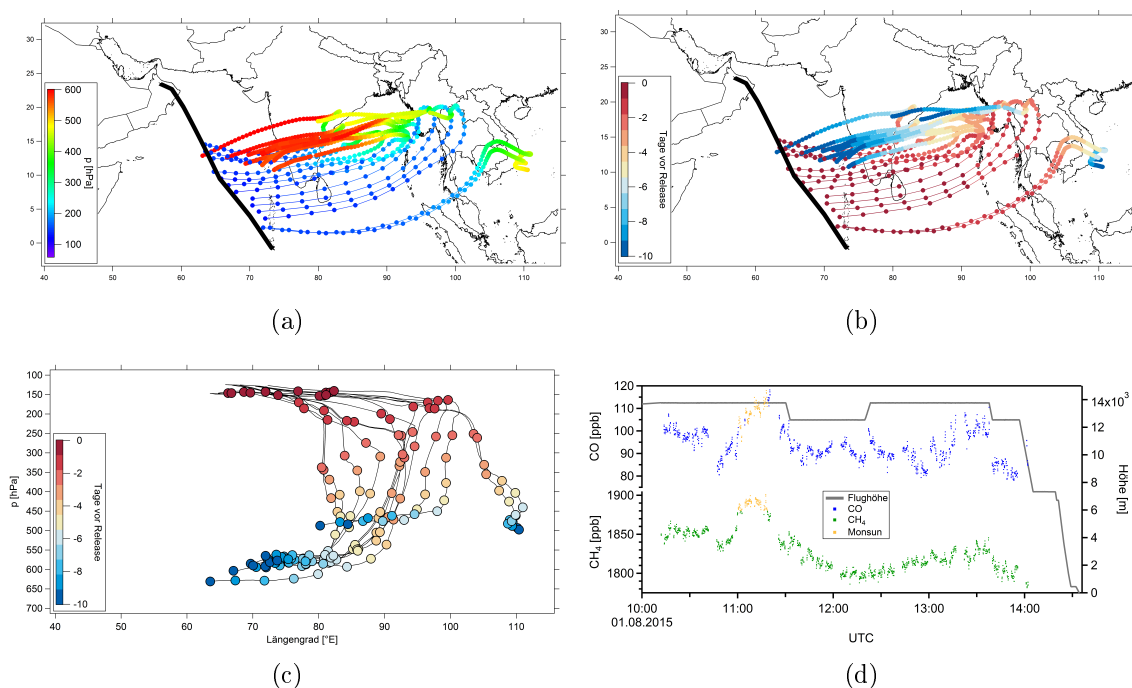


Abbildung 4.27.: Flug 11 (01.08.2015): Rückwärtstrajektorien mit farbkodiertem Druck (a) und farbkodierter Zeit (b). (c) Rückwärtstrajektorien entlang des Längengrads gegen den Druck mit farbkodierter Zeit, (d) in situ- $CH_4$  (unten) und  $CO$  (oben) mit jeweils gelb markiertem AMA-Einfluss und Flughöhe (grau).

In Kapitel 4.5.3 wurde anhand von Flug 20 beschrieben, wie Emissionen in der unteren Troposphäre über Indien aufgenommen und über dem Golf von Bengalen in die obere Troposphäre transportiert wurden. Hier wird anhand von Flug 11 ein Fall präsentiert, in dem der Verlauf der Trajektorien in der unteren Troposphäre ähnlich ist. Allerdings werden in dem Bereich der *Release points* für die gemessenen Spurengase keine erhöhten Mischungsverhältnisse angezeigt. Während Flug 11 (Abbildung 4.25(a), Abbildung 4.27(d)) nehmen die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse nach Süden hin ab. Die in situ- $CH_4$ -Werte sind nach dem AMA-Einfluss auf im Mittel

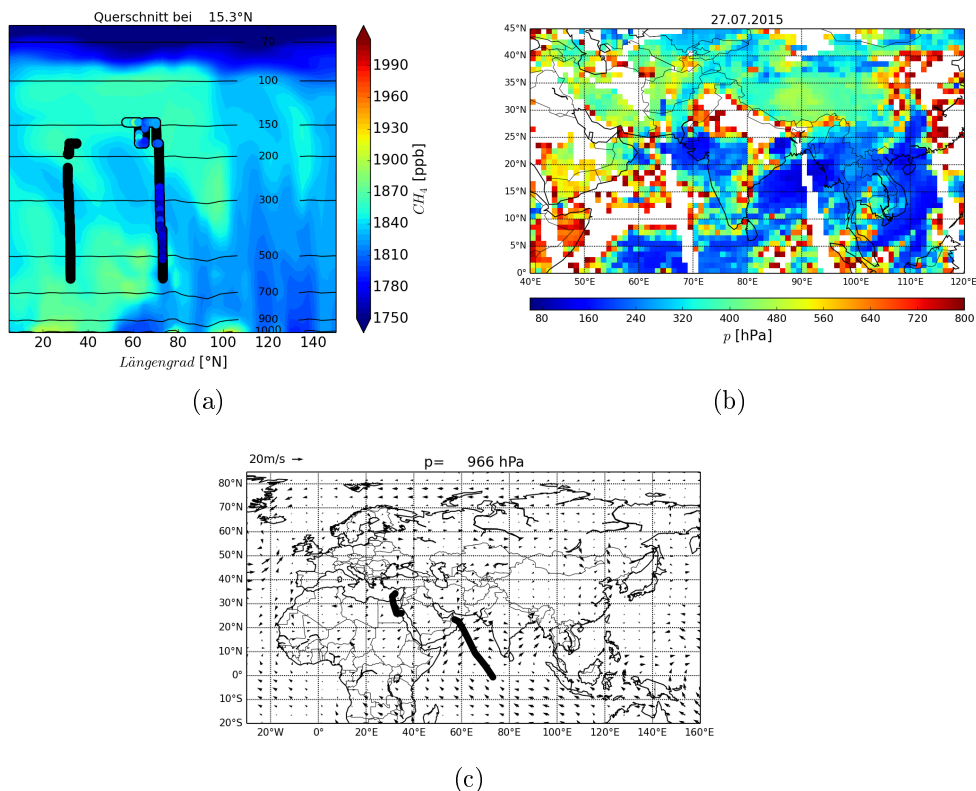


Abbildung 4.28.: Flug 11 (01.08.2015): (a)  $CH_4$ -Vertikalprofil für EMAC-Tagesmittel vom 24.07.2015 entlang  $15.3^\circ N$ , (b) Wolkenobergrenze aus Satellitendaten vom 27.07.2015, (c) Windfeld vom 01.08.2015 aus EMAC-Tagesmitteln auf 966 hPa.

$1814.1 \pm 14.2$  ppb gesunken und die  $CO$ -Werte auf  $91.4 \pm 6.3$  ppb. Die Rückwärtstrajektorien verlaufen südlich der AMA über Südindien (Abbildung 4.27(a)), also über ein Gebiet mit geringeren Spurengasmischungsverhältnissen als in Zentral-, bzw. Nordindien (Kavitha and Nair (2016)). Dennoch sind die Zugbahnen in ähnlichen Breitengraden wie von Flug 20. Die Trajektorien starteten über dem Arabischen Meer und zogen in einer Höhe von 650 – 550 hPa mit der typischen Monsunströmung von West nach Ost über Südindien in den Golf von Bengalen (Abbildung 4.27(c)). Bis dorthin benötigten sie ca. 5 Tage (Abbildung 4.27(b)). Anschließend wurden sie 5 – 2 Tage vor der Messung in die obere Troposphäre transportiert, bevor sie in den letzten ca. 2 Tagen in der oberen Troposphäre mit dem Tropenjet nach Westen zur Flugroute strömten. Während die Trajektorien in der unteren Troposphäre über Indien zogen, sind keine hochreichenden Wolken in den Satellitendaten zu erkennen, wie für den 27.07.2015 in Abbildung 4.28(b) dargestellt. Über dem Golf von Bengalen waren hochreichende Wolken während der Vertikalbewegung der Trajektorien zu erkennen. In den EMAC-Tagesmitteln wurden keine erhöhten  $CH_4$ -Werte für den Zeitraum, in dem die Trajektorien in der unteren Troposphäre waren, simuliert, wie im Vertikalprofil für den 24.07.2015 entlang  $15.3^\circ N$  zu erkennen (Abbildung 4.28(a)). In südliche Richtung änderten sich die Profile der Mischungsverhältnisse kaum. Über dem Golf von Bengalen wurden ebenfalls keine erhöhten  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse

simuliert, wodurch es auch dort zu keiner Aufnahme von Emissionen gekommen ist. Während des Transports der Trajektorien vom Golf von Bengalen Richtung Westen war hochreichende Konvektion über Südindien in Satellitendaten zu erkennen, aber in diesem Zeitraum hat EMAC ebenfalls keine Emissionen und damit verbundene Vertikaltransporte verschmutzter Luftmassen in die obere Troposphäre simuliert. Die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse sanken, je weiter HALO Richtung Äquator flog (Abbildung 4.27(d)). Dennoch zeigen die  $CH_4$ -Werte einen leichten Anstieg zwischen 12:45-13:45 UTC, welcher in den  $CO$ -Werten noch viel deutlicher zu erkennen ist. Die dazugehörigen Trajektorien starteten über dem Golf von Bengalen und strömten anschließend Richtung Myanmar, wo sie in die obere Troposphäre transportiert wurden. In diesem Gebiet war zum einen hochreichende Bewölkung vorhanden, zum anderen simulierte EMAC erhöhte  $CH_4$ -Werte in der unteren Troposphäre, sodass diese Richtung Flugroute transportiert werden konnten. Jedoch lag das Konvektionsgebiet außerhalb der AMA und die Emissionen in Kombination mit der Konvektion waren nicht so stark, dass die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse den Schwellwert übersteigen konnten. Es könnte aber auch sein, dass die Luftmassen auf Grund der Zugbahnen der Trajektorien von Luftmassen mit geringeren Mischungsverhältnissen beeinflusst wurden und die Mischungsverhältnisse verdünnt wurden.

Die gemessenen  $CH_4$ -Werte von  $1814.1 \pm 14.2$  ppb deuten auf einen Einfluss der Südhemisphäre hin. Die Lage der ITCZ ist im Nordhemisphärensommer über Asien bis ca.  $30^\circ$  N verschoben (Yan (2005)). Die Trajektorien reichten mit ihrer nördlichsten Erstreckung bis ca.  $20^\circ$  N. Damit sind sie von der Südhemisphäre beeinflusst, was zu geringeren Mischungsverhältnissen, vor allem im  $CH_4$ , führte im Vergleich zu Flügen über dem Mittelmeer, welches den Hintergrund der Nordhemisphäre darstellt. Die Trajektorien in der unteren Troposphäre folgten der globalen Zirkulation, da sie mit einem Südwest-Wind über den indischen Subkontinent transportiert wurden. Dieser Südwestwind stammte aus dem Südostpassat der Südhemisphäre und wird beim Überströmen des Äquators wegen der Corioliskraft in einen Südwestpassat umgewandelt (Kraus (2007), Abbildung 4.28(c)). Somit stammten die Luftmassen aus der Südhemisphäre. Diese hat weniger  $CH_4$ -Quellen als die Nordhemisphäre, wie in Kapitel 4.2 beschrieben wurde, sodass die Mischungsverhältnisse geringer sind. Der  $CH_4$ -Wert passt auch gut zu den Hintergrundwerten des zentralen Modes mit im Mittel  $1815.1 \pm 22.5$  ppb (Tabelle 4.2), da die Flüge hauptsächlich über dem Indischen Ozean stattfanden. Die Differenz zur AMA lag hier bei 74.9 ppb und war somit kleiner als die mittlere Differenz des zentralen Modes (86.3 ppb). Allerdings hat die Konvektion über den Zeitraum des zentralen Modes zugenommen, sodass die  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse in der AMA angestiegen sind und die Differenz zwischen dem Hintergrund der Südhemisphäre und der AMA ebenfalls größer wurde. Flug 11, speziell der Flugabschnitt zwischen Oman und Gan über dem Arabischen Meer, stimmt somit gut mit dem zentralen Mode überein.



Dieser Fall hat zum einen den Südhemisphäreneinfluss gezeigt und zum anderen, dass ein Verlauf der Trajektorien in der unteren Troposphäre über den indischen Subkontinent nicht immer mit der Aufnahme von Emissionen verbunden ist, wie im Fall von Flug 20 (Kapitel 4.5.3). Dennoch ist der Verlauf der Trajektorien in beiden Flügen vergleichbar. Nach dem Transport über Indien wurden die Trajektorien über dem Golf von Bengalen südlich der AMA in die obere Troposphäre transportiert und anschließend mit dem Tropenjet nach Westen geleitet. Die zeitliche Variabilität in den Emissionen und der Konvektion hat somit Einfluss auf die chemische Zusammensetzung der oberen Troposphäre.

## 5. Zusammenfassung und Ausblick

Die Asiatische Monsun Antizyklone wird noch immer nicht vollständig verstanden (Randel et al. (2016)). Ein Aspekt davon ist die Dynamik des Monsuns und seine Konvektion, sowie der Spurengastransport in die obere Troposphäre und die Ausbreitung von Spurengasen außerhalb der AMA. Es ist wichtig die AMA und ihren globalen Einfluss besser zu verstehen. Dies ist notwendig, da die Emissionen in Süd-asien zunehmen und so der Einfluss der AMA auf die obere Troposphäre größer wird und damit auch ihr globaler Einfluss, da sie in die globale Zirkulation eingebunden ist. Dazu gehören Transportwege von verschmutzten Luftmassen in die AMA und ihr Ausströmen in Bezug auf das Überbrücken von Transportbarrieren.

Im Juli und August 2015 fand die Flugzeugkampagne OMO statt mit Flügen in der oberen Troposphäre über dem Mittelmeer, der Arabischen Halbinsel und dem Arabischen Meer. Während OMO wurden mit TRISTAR in situ-Messungen von den Spurengasen  $CO$  und  $CH_4$  an Bord von HALO aufgezeichnet, welche einen deutlichen Anstieg in den Mischungsverhältnissen zeigten, wenn sie von der AMA beeinflusst wurden. Für eine komplexere Analyse der meteorologischen Situation in Bezug auf die Transportprozesse wurden auch Rückwärtstrajektorien und Modellsimulationen verwendet.

Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt vor allem auf dem Langstreckentransport von Luftmassen aus der AMA heraus und in ihre Umgebung. Der Schwerpunkt liegt auf Grund der Flugrouten auf dem Transport westlich der AMA. Die Ausbreitung verschmutzter Luftmassen kann besonders gut mit langlebigen Spurengasen nachvollzogen werden. Hier ist besonders  $CH_4$  geeignet, da es zusätzlich noch eine geringe Hintergrundvariabilität aufweist.

Zunächst wurden die einzelnen verwendeten Mittel anhand von Flug 19 vorgestellt. So wurden EMAC-SD4-Simulationen entlang der Flugrouten mit in situ-Daten verglichen. Beide Datensätze zeigten einen Anstieg für  $CO$  und  $CH_4$  über dem Oman. Mit Hilfe von Rückwärtstrajektorien, welche mit dem Lagrange'schen Partikeldispersionsmodell FLEXPART berechnet wurden, konnte die Herkunft der Luftmassen 10 Tage vor der Messung bestimmt werden. Sie stammten dabei aus der AMA und deuteten zudem Konvektion über einem Gebiet zwischen Nordindien und Myanmar an. Dies konnte mit hochreichenden Wolken aus Satellitendaten bestätigt werden, sodass die Konvektion von FLEXPART hier aufgelöst wurde. Auf Grund der Zug-

bahnen und der Mischungsverhältnisse, ist von einem troposphärischen Ursprung der Trajektorien aus der AMA auszugehen. Der *Footprint* der Trajektorien zeigte den Ursprung in einem Gebiet zwischen Indo-Ganges-Ebene, Nordostindien, Bangladesch und dem Golf von Bengalen. Diese Region konnte mit simulierten Emissionen aus EMAC bestätigt werden. Sie wurde unter anderem auch von Bergman et al. (2013) als Hauptquelle für Trajektorien, welche in die AMA transportiert werden, analysiert. Des Weiteren ist dieses Gebiet dicht besiedelt mit einer sich entwickelnden Wirtschaft, sodass Emissionen im industriellen, landwirtschaftlichen und privaten Sektor über die nächsten Jahre weiterhin zunehmen werden. Diese Emissionen bestimmen die chemische Zusammensetzung in der AMA und dank der Dynamik der AMA auch die ausgeströmten Luftmassen in der oberen Troposphäre.

Es wurden Profile für den Hintergrund, die Südhemisphäre und die AMA erstellt. Die deutlichsten Unterschiede zeigte das *in situ-CH<sub>4</sub>*. Das AMA-Profil hat in einer Höhe von 300 – 140 hPa stark erhöhte Mischungsverhältnisse, sodass die vertikale Ausdehnung der AMA abgeschätzt werden konnte, welche die von Randel and Park (2006) angegebene Höhe von 200 – 100 hPa widerspiegelt. Das *CH<sub>4</sub>*-Profil der Südhemisphäre hat die geringsten Mischungsverhältnisse. Die *in situ-CO*-Profile und die EMAC-Profile von *CO* und *CH<sub>4</sub>* zeigten kaum Unterschiede mit Ausnahme des EMAC-Profiles von *CO* für die AMA, welches mit der Höhe eine Zunahme in den Mischungsverhältnissen zeigte. Die deutlichen Unterschiede in den *CH<sub>4</sub>*-Profilen wurden mit der langen Lebensdauer von *CH<sub>4</sub>* und der damit einhergehenden gleichmäßigen Durchmischung in der Atmosphäre erklärt.

Mittels der Hintergrundprofile für gemessenes *CH<sub>4</sub>* wurde ein *CH<sub>4</sub>*-Schwellwert von 1879.8 ppb berechnet. Er konnte als ein einfaches Mittel herangezogen werden, um eine erste Unterteilung der Daten zwischen AMA und Hintergrund vorzunehmen.

In einer 3D-Verteilung von Rückwärtstrajektorien war zu erkennen, dass vor allem im *CH<sub>4</sub>* die Trajektorien mit erhöhten Mischungsverhältnissen aus der AMA stammten und hauptsächlich in der oberen Troposphäre vorzufinden waren. Die Trajektorien mit geringeren Mischungsverhältnissen verliefen auch außerhalb der AMA-Zirkulation oder kamen in der unteren und mittleren Troposphäre überwiegend aus dem Westen. Für *CO* ist eine Unterscheidung bezüglich der Mischungsverhältnisse und der Herkunft nicht so eindeutig, da es Trajektorien mit hohen *CO*-Werten auch in der unteren und mittleren Troposphäre gab, welche ihren Ursprung im Westen hatten.

EMAC hat *CO* mit  $-4.6 \pm 11.8$  ppb überschätzt und *CH<sub>4</sub>* mit  $7.0 \pm 32.8$  ppb unterschätzt. Die größten Abweichungen gab es in der *CH<sub>4</sub>*-Simulation, welche die Südhemisphäre überschätzte und die AMA unterschätzte. Diese Unterschiede konnten in *CO* nicht gesehen werden. Dies hat auch Auswirkungen auf die Unterteilung der Spurengase hinsichtlich des AMA-Einflusses. Unter AMA-Einfluss stieg das gemessene *CO* um 20.1 ppb und *CH<sub>4</sub>* um 72.1 ppb an. EMAC hat einen Unterschied

zwischen AMA und Hintergrund für  $CO$  von 14.7 ppb und für  $CH_4$  von 24.0 ppb simuliert. Damit fallen die Differenzen von EMAC-Daten im Vergleich zu den gemessenen Daten geringer aus.

Neben der Einteilung zwischen AMA und Hintergrund konnte die AMA auch in der EMAC-3D-Simulation hinsichtlich ihrer Lage und Ausdehnung betrachtet werden. Hierbei ist die AMA vor allem in einer Kombination aus  $CH_4$  und Windfeld in ihrer Lage und Form auf der horizontalen 200 hPa-Ebene zu erkennen. Der chemische Abdruck und die Isolation der AMA von ihrer Umgebung sind deutlich erkennbar. Während OMO erstreckte sich die AMA über den Bereich des klimatologischen AMA-Zentrums (Nützel et al. (2016)). Eine Unterteilung in vier verschiedene AMA-Lagen war ebenfalls mit EMAC möglich. Die AMA hatte zunächst zwei Antizyklone. Daran angeschlossen waren ein zentraler Mode und ein tibetischer Mode nach Zhang et al. (2002) zu beobachten, bevor sich die AMA für den vierten Mode wieder in zwei Antizyklone aufspaltete. Die unterschiedlichen Moden konnten auch in den in situ-Daten gesehen werden, da sich die Mischungsverhältnisse von Mode zu Mode veränderten. Hierbei war der Südhemisphäreneinfluss im zentralen Mode im  $CH_4$ -Hintergrund auf Grund der Flugrouten über dem Arabischen Meer zu erkennen. Während der Kampagne konnte eine Zunahme der Konvektion anhand von ansteigenden Mischungsverhältnissen im AMA-beeinflussten  $CH_4$  beobachtet werden. Dabei hat sich der Einfluss der AMA bis über das östliche Mittelmeer erstreckt, besonders während zwei Antizyklonen, als die westliche Antizyklone in diesem Gebiet lag.

Die chemische Isolation der AMA in der westlichen Antizyklone konnte mittels der Berechnung der  $CO$ -Oxidation bestätigt werden. Hiermit konnte sowohl die starke Transportbarriere gezeigt werden, als auch die Alterung der Luftmasse in der westlichen Antizyklone, welche von ihrer Umgebung isoliert war und im Gegensatz zur östlichen Antizyklone nicht permanent mit kürzlich verschmutzten Luftmassen durch Konvektion beeinflusst wurde. Die starke Zirkulation ist auch in den Rückwärtstrajektorien zu sehen, welche ca. 5 Tage in der westlichen Antizyklone eingeschlossen waren.

Erhöhte Mischungsverhältnisse von  $CO$  und  $CH_4$  konnten nicht nur innerhalb der AMA beobachtet werden, sondern auch außerhalb. Mittels der EMAC-Daten konnte das Ausströmen aus der AMA untersucht werden. Hierfür wurden zunächst Luftmassen mit der Konvektion am Südwestrand der AMA in die obere Troposphäre transportiert. Die Konvektion fand damit an der bevorzugten Position für Konvektion an der AMA statt (Park et al. (2007)). Die Luftmasse wurde anschließend mit der AMA-Zirkulation nach Westen geführt. Das durch Instabilitäten in der AMA auftretende Abschwächen der Transportbarriere konnte in zwei Fällen (Flug 11 und Flüge 12/13 & 17/18) beobachtet werden. In beiden Fällen strömte eine Luftmasse am südwestlichen AMA-Rand aus der Antizyklone und bewegte sich mit dem

Tropenjet nach Westen über die Arabischen Halbinsel. Auf Grund der Flüge konnte für eine Luftmasse dabei ein Lagrange'scher Transport beobachtet werden. Die Bewegung der Luftmasse konnte mit EMAC nachvollzogen werden und wurde von den in situ- $CH_4$ -Werten widerspiegelt. Luftmassen, welche aus der AMA heraus geströmt sind, wurden irreversibel in die Umgebung eingetragen. Auf diese Weise wird die Atmosphärenchemie in der oberen Troposphäre nicht nur innerhalb der AMA, sondern auch außerhalb verändert. Ein anderer Fall (Flug 20) beschreibt den Transport erhöhter Spurengase außerhalb der AMA, wobei die Konvektion außerhalb des typischen Konvektionsgebietes stattfand und von EMAC nicht aufgelöst wurde, da der Transport der Emissionen indirekt und bei schwacher Konvektion stattfand. Die Emissionen wurden in der unteren Troposphäre aufgenommen und über dem Golf von Bengalen in einem Konvektionsgebiet vertikal nach oben transportiert. Das Gegenteil konnte für Flug 11 beobachtet werden. Trotz ähnlicher Herkunft und Zugbahnen der Trajektorien zu Flug 20 wurden über Indien keine erhöhten Spurengasmischungsverhältnisse aus Emissionen von der Luftmasse aufgenommen, da keine Konvektion und damit verbundener vertikaler Transport von Emissionen stattfand. Vielmehr zeigten die geringen  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse den Einfluss der Südhemisphäre auf Grund der nach Norden verschobenen ITCZ. Ein weiteres Konvektionsgebiet mit direktem Vertikaltransport konnte für Flug 11 über Nordwestindien identifiziert werden. Es liegt außerhalb des üblichen Konvektionsgebietes. Auf Grund seiner Lage und dem anschließenden Ausströmen hat es einen Einfluss auf die obere Troposphäre und verdeutlicht die Komplexität der AMA.

Die Zunahme der in situ- $CH_4$ -Mischungsverhältnisse unter AMA-Einfluss durch die Intensivierung der Konvektion im Verlauf der Kampagne spiegelt die Auswirkungen der Dynamik der AMA auf die Spurengase wider. Des Weiteren konnten verschiedene Transportwege in und aus der AMA analysiert werden. Dies hat den Einblick in die Komplexität der AMA und ihren Einfluss auf die globale Zirkulation vertieft. Die Verbindung von verschiedenen Mitteln, wie Modellen, Rückwärtstrajektorien und vor allem in situ-Messungen, helfen die Prozesse der AMA besser zu verstehen und damit auch ihre Bedeutung auf regionaler und globaler Ebene einschätzen zu können. Somit führen die Ziele dieser Arbeit zu einer Erweiterung der Kenntnisse bezüglich der Langstreckentransporte von Spurengasen und der damit verbundenen Spurengasverteilungen im Zusammenhang mit der AMA und tragen damit zu einem verbesserten Prozessverständnis der AMA bei.

Für detailliertere Analysen der chemischen Prozesse werden weitere Spurengase benötigt, welche in dieser Arbeit nicht berücksichtigt, aber während OMO aufgezeichnet wurden. Da die Emissionen im Einzugsgebiet der AMA zunehmen werden, ist es wichtig die veränderte Atmosphärenchemie in der oberen Troposphäre gut zu verstehen, um auch weitere Veränderungen in den Emissionsquellen und ihre globalen Auswirkungen erfassen zu können. Außerdem fanden die Messungen in der oberen

---

Troposphäre statt, weil die Flugrouten westlich der AMA und südlich des Subtropenjets auf einer mittleren Flughöhe von 200 hPa stattfanden. Für eine Erweiterung des Wissens bezüglich der AMA sollten zukünftige Kampagnen, sowohl in anderen geographischen Lagen, als auch Höhen stattfinden, um den Einfluss z.B. auf die Stratosphäre oder in Richtung Pazifik näher zu untersuchen.

# A. Anhang

## A.1. Messinstrumente bei OMO

Tabelle A.1.: Übersicht der Messinstrumente bei OMO.

Komponente	Instrument	Messprinzip	Institut
$CH_4$ CO HCHO	TRIHOP-TRISTAR	optische Absorptions- spektroskopie	MPIC
$H_2O_2$ ROOH	TRIHOP-HYPHOP	Enzym-katalysierte Fluoreszenz	MPIC
VOCs	MGC	Fast-Gaschromatograph-MS	MPIC
$NO_2$ OH $HO_2$	HORUS	Laser induzierte Fluoreszenz	MPIC
$O_3$	FAIRO	UV/Chemilumineszenz Absorption	KIT
VOCs	KMS	Protonen-Transfer- Massenspektrometer	KIT
OH $HO_2$ $RO_2$	AIR-LIF	Laser induzierte Fluoreszenz	FZJ
J-Werte	SR	Spektralradiometer	FZJ
$RO_2$	PERCEAS	Cavity-Ringdown	IUP Bremen
	MIRAH	Probenahme in Kanister	Uni Wuppertal
halogenierte VOCs	mini-DOAS	DOAS	Uni Heidelberg
$SO_2$ $HNO_3$ HCl	PAN-MS	Chemisch ionisierendes MS	DLR
NO $NO_y$	AENEAS		DLR
$H_2O$	SHARC		DLR
Partikel	CPC	TOF	DLR
meteorologische Parameter	BAHAMAS		DLR

## A.2. Abkürzungsverzeichnis

### A.2.1. chemische Komponenten

<i>CO</i>	Kohlenmonoxid
<i>CO<sub>2</sub></i>	Kohlenstoffdioxid
<i>CH<sub>3</sub></i>	Methylradikal
<i>CH<sub>3</sub>O<sub>2</sub></i>	Methylperoxyradikal
<i>CH<sub>4</sub></i>	Methan
<i>H</i>	Wasserstoffatom
<i>HCHO</i>	Formaldehyd
<i>HO<sub>2</sub></i>	Hydroperoxyradikal
<i>HO<sub>x</sub></i>	<i>OH + HO<sub>2</sub></i>
<i>M</i>	Stoßpartner
<i>N<sub>2</sub></i>	Stickstoff
<i>NO</i>	Stickstoffmonoxid
<i>NO<sub>2</sub></i>	Stickstoffdioxid
<i>NO<sub>x</sub></i>	<i>NO + NO<sub>2</sub></i>
<i>O<sub>2</sub></i>	Sauerstoff
<i>O<sub>3</sub></i>	Ozon
<i>OH</i>	Hydroxylradikal
<i>PAN</i>	Peroxyacetylnitrat

### A.2.2. sonstige Abkürzungen

AC-GCM	atmospheric chemistry global circulation model
AMA	Asiatische Monsun Antizyklone
ASMA	Asiatische Sommer Monsun Antizyklone
CARIBIC	Civil Aircraft for the Regular Investigation of the atmosphere Based on Instrument Container
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
ECHAM5	European Centre Hamburg, 5. Generation des Modells
ECMWF	European Centre for Medium Range Weather Forecast
EDGAR2.0	Emission Database for Global Atmosphere Research 2.0
EMAC	ECHAM/MESSy Atmospheric Chemistry
EMPA	Eidgenössische Materialprüfungs- und Forschungsanstalt
ESMVal	Earth System Model Validation
FZJ	Forschungszentrum Jülich
GCM	global circulation model
GFED	Global Fire Emissions Database
HALO	High Altitude and Longrange Research Aircraft
HYPHOP	HYdrogen Peroxide and Higher Organic Peroxides



---

IPCC	Intergovernmental Panel for Climate Change
IR	infrarot
ITCZ	Innertropische Konvergenzzone
IUPAC	International Union of Pure and Applied Chemistry
KIT	Karlsruhe Institut für Technologie
LPDM	Lagrange'sches Partikeldispersionsmodell
MPI-C	Max-Planck-Institut für Chemie
MESSY	Modular Earth Submodel Systeme
MINOS	Mediterranean INTensive Oxidant Study
MODIS	Moderate-resolution Imaging Spectroradiometer
MOZAIC	Measurement of OZone by Airbus In-service airCRAFT
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NIST	National Institute of Standards and Technology
NOAA	Notional Oceanic & Atmospheric Administration
OMO	Oxidation mechanism observations
PBL	Planetare Grenzschicht
QCL	Quantum Cascade Laser
QUALITAS	QUAntum cascade Laser Instrument for mid-infrared Trace gas Absorption Spectroscopy
RCP	Representative Concentration Pathways
SAH	Südasiatisches Hoch
TDL	Tunable Diode Laser
TDLAS	Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy
TRIHOP	HALO-Rack von TRISTAR und HYPHOP
TRISTAR	TRacer In-Situ Tunable diode laser absorption spectrometer for Atmospheric Research
WMO	World Meteorological Organisation

## A.3. FLEXPART: Quellcode und Einstellungen

*Listing A.1: COMMAND-Datei für Flug 11 (01.08.2015)*

```

*****
*   Input file for the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART *
*                                     Please select your options *
*****
1.  ___          3X, I2
    -1
    LDIRECT      1 FOR FORWARD SIMULATION, -1 FOR BACKWARD
                  SIMULATION
2.  _____ 3X, I8, 1X, I6
    20150722 000000
    YYYYMMDD HHMISS BEGINNING DATE OF SIMULATION
3.  _____ 3X, I8, 1X, I6
    20150801 150000
    YYYYMMDD HHMISS ENDING DATE OF SIMULATION
4.  _____ 3X, I5
    10800
    SSSSS       OUTPUT EVERY SSSSS SECONDS
5.  _____ 3X, I5
    10800
    SSSSS       TIME AVERAGE OF OUTPUT (IN SSSSS SECONDS)
6.  _____ 3X, I5
    900
    SSSSS       SAMPLING RATE OF OUTPUT (IN SSSSS SECONDS)
7.  _____ 3X, I9
    999999999
    SSSSSSSSS   TIME CONSTANT FOR PARTICLE SPLITTING (IN SECONDS)
8.  _____ 3X, I5
    900
    SSSSS       SYNCHRONISATION INTERVAL OF FLEXPART (IN SECONDS)
9.  ----.--- 4X, F6.4
    2.0
    CTL        FACTOR, BY WHICH TIME STEP MUST BE SMALLER THAN TL
10. ____ 4X, I3
    4
    IFINE      DECREASE OF TIME STEP FOR VERTICAL MOTION BY
                FACTOR IFINE
11. - 4X, I1
    5
    IOUT       1 CONCENTRATION (RESIDENCE TIME FOR BACKWARD RUNS)
                OUTPUT, 2 MIXING RATIO OUTPUT, 3 BOTH, 4 PLUME TRAJECT., 5=1+4
12. - 4X, I1
    1
    IPOUT      PARTICLE DUMP: 0 NO, 1 EVERY OUTPUT INTERVAL, 2
                ONLY AT END

```

```

13. _          4X, I1
    1
    LSUBGRID      SUBGRID TERRAIN EFFECT PARAMETERIZATION: 1 YES, 0
                   NO
14. _          4X, I1
    1
    LCONVECTION   CONVECTION: 1 YES, 0 NO
15. _          4X, I1
    0
    LAGESPECTRA   AGE SPECTRA: 1 YES, 0 NO
16. _          4X, I1
    0
    IPIN          CONTINUE SIMULATION WITH DUMPED PARTICLE DATA: 1
                   YES, 0 NO
17. _
    1             4X, I1
    IOFR          IOUTPUTFOREACHREL CREATE AN OUPUT FILE FOR EACH
                   RELEASE LOCATION: 1 YES, 0 NO
18. _          4X, I1
    0
    IFLUX         CALCULATE FLUXES: 1 YES, 0 NO
19. _          4X, I1
    0
    MDOMAINFILL   DOMAIN-FILLING TRAJECTORY OPTION: 1 YES, 0 NO, 2
                   STRAT. O3 TRACER
20. _          4X, I1
    1
    IND_SOURCE     1=MASS UNIT , 2=MASS MIXING RATIO UNIT
21. _          4X, I1
    1
    IND_RECEPTOR 1=MASS UNIT , 2=MASS MIXING RATIO UNIT
22. _          4X, I1
    0
    MQASILAG      QUASILAGRANGIAN MODE TO TRACK INDIVIDUAL PARTICLES
                   : 1 YES, 0 NO
23. _          4X, I1
    0
    NESTED_OUTPUT SHALL NESTED OUTPUT BE USED? 1 YES, 0 NO
24. _          4X, I1
    0
    LINIT_COND     INITIAL COND. FOR BW RUNS: 0=NO,1=MASS UNIT,2=MASS
                   MIXING RATIO UNIT
25. _          4X, I1
    0
    SURF_ONLY     IF THIS IS SET TO 1, OUTPUT IS WRITTEN ONLY OUT
                   FOR LOWEST LAYER

```

*Listing A.2:* RELEASES-Datei für Flug 11 (01.08.2015) mit zwei release points

```
*****
* Input file for the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART *
*           Please select your options                               *
*****
+++++

1           Total number of species emitted
24          Index of species in file SPECIES
=====

20150801  050000
20150801  060000
32.0000
34.0000
33.0000
35.0000
2
2500.00
3000.00
10000
1.00000
OMO_11_0
+++++

20150801  060000
20150801  070000
31.0000
33.0000
32.0000
34.0000
2
7500.00
8000.00
10000
1.00000
OMO_11_1
+++++
```

## A.4. Übersicht Flüge

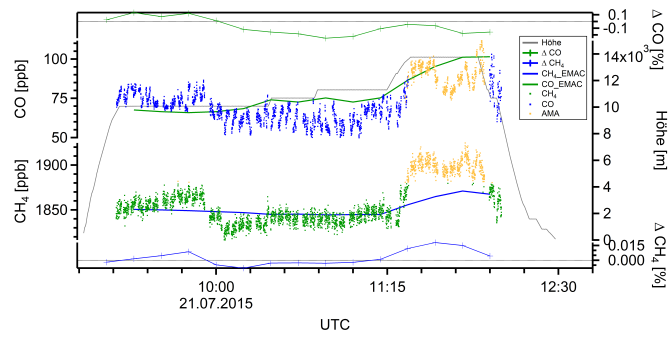
Für jeden Flug werden folgende Informationen über 300 hPa dargestellt:

(a): Zeitreihe für  $CH_4$  (unten) und  $CO$  (oben), jeweils in situ- ( $CH_4$ : grüne Punkte,  $CO$ : blaue Punkte) und EMAC-SD4-Daten ( $CH_4$ : blaue Linie,  $CO$ : grüne Linie) und der Abweichung zwischen Modell und in situ-Messung ( $\Delta = (in\ situ - Modell)/in\ situ$ ;  $CH_4$ : blaue Linie mit Kreuzen,  $CO$ : grüne Linie mit Kreuzen), ebenso wie die Flughöhe in km (graue Linie). Außerdem sind die in situ-Daten oberhalb des  $CH_4$ -Schwellwertes für den AMA-Einfluss gelb markiert. Eine Flughöhe von ca. 11.6 km entspricht in etwa 200 hPa und stellt eine typische Flughöhe dar.

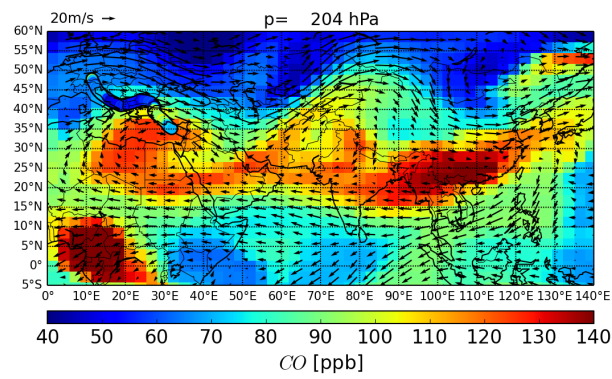
(b): horizontale 2D-EMAC-Daten für  $CO$  auf einer Druckfläche von 204 hPa, inklusive Windfeld und den in situ- $CO$ -Mischungsverhältnissen entlang der Flugroute.

(c): horizontale 2D-EMAC-Daten für  $CH_4$  auf einer Druckfläche von 204 hPa, inklusive Windfeld und den in situ- $CH_4$ -Mischungsverhältnissen entlang der Flugroute.

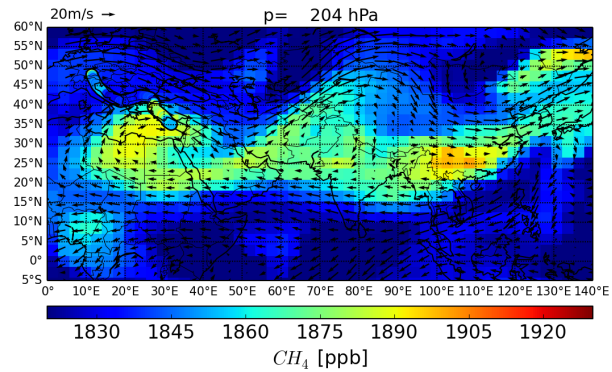
(d): 10 Tage-Rückwärtstrajektorien: FLEXPART-Schwerpunktstrajektorien in 10 min-Abständen entlang der Flugroute (schwarze Linie), der Farbcode entspricht der Höhe der Trajektorien in hPa.



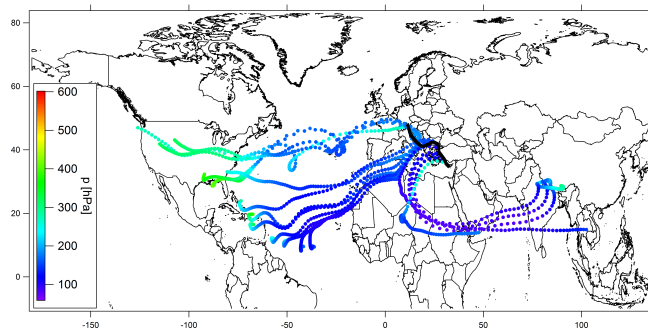
(a)



(b)

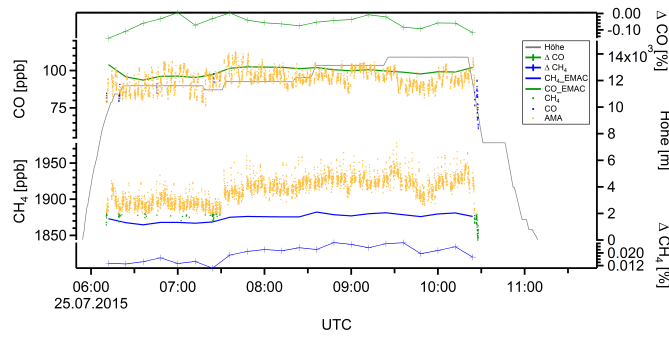


(c)

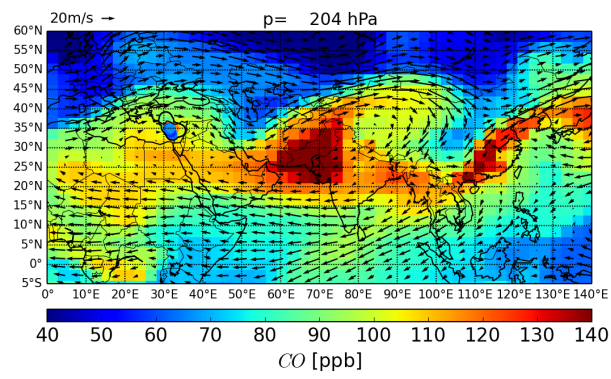


(d)

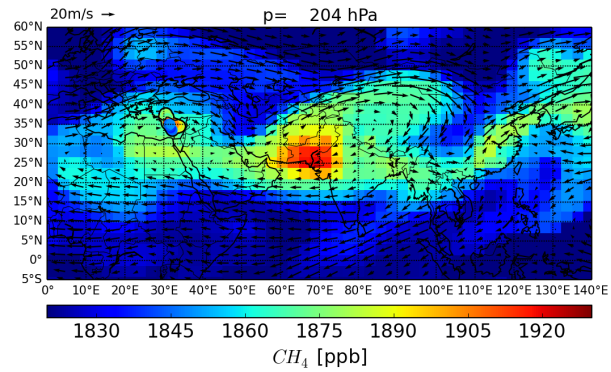
Abbildung A.1.: Flug 08 (21.07.2015): Transferflug von Oberpfaffenhofen nach Paphos.



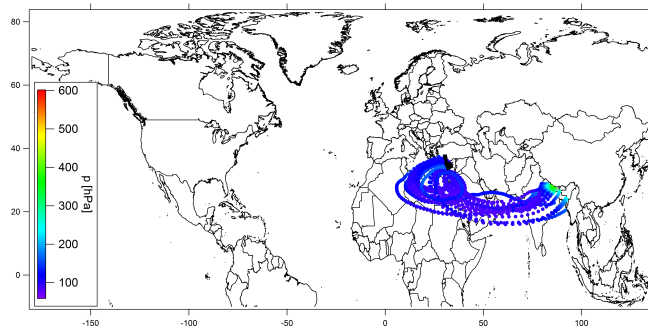
(a)



(b)

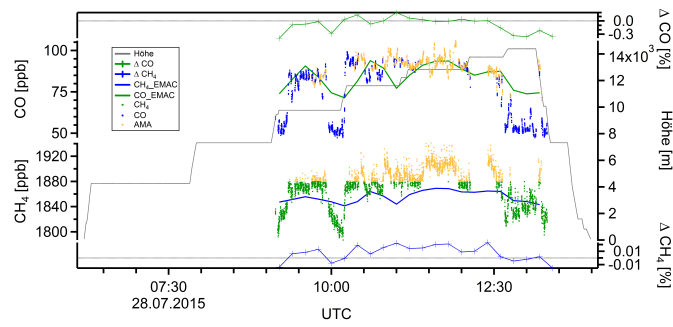


(c)

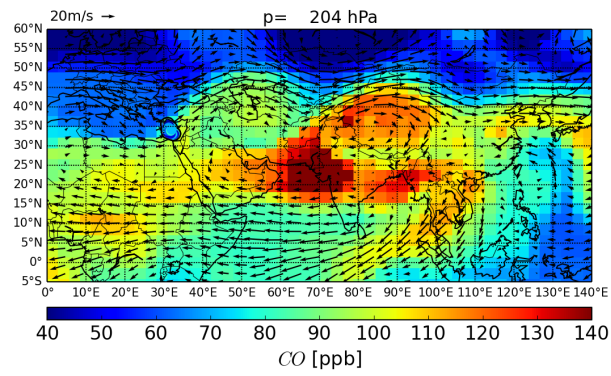


(d)

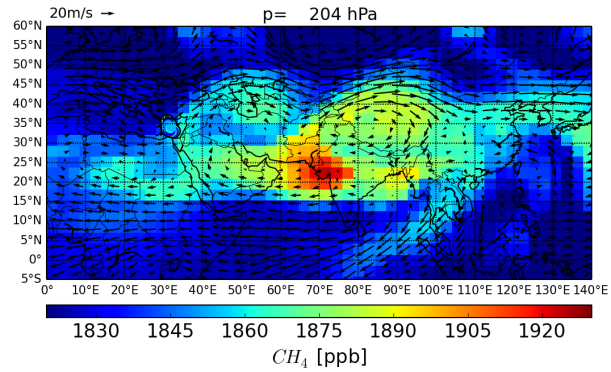
Abbildung A.2.: Flug 09 (25.07.2015): Messflug von Paphos nach Paphos über Zypern.



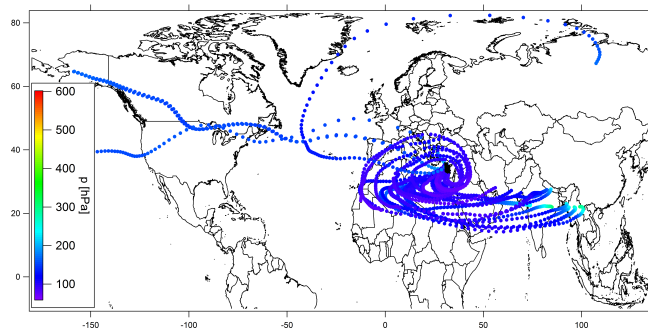
(a)



(b)



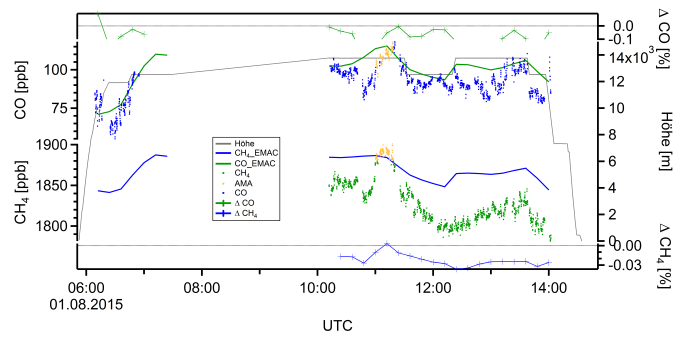
(c)



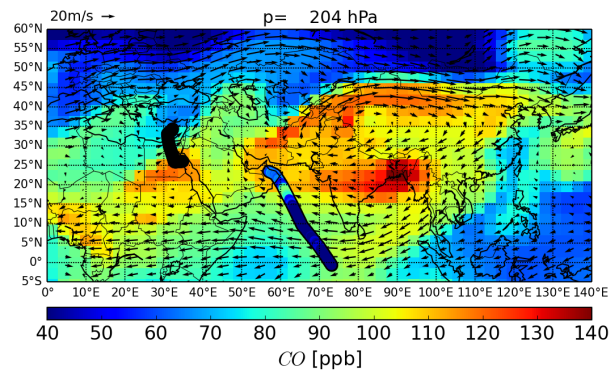
(d)

Abbildung A.3.: Flug 10 (28.07.2015): Messflug von Paphos nach Paphos über Zypern.

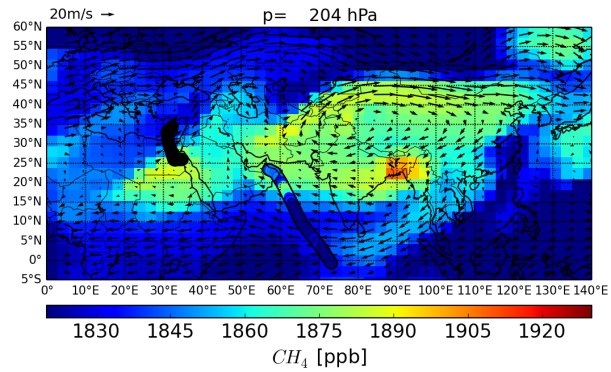




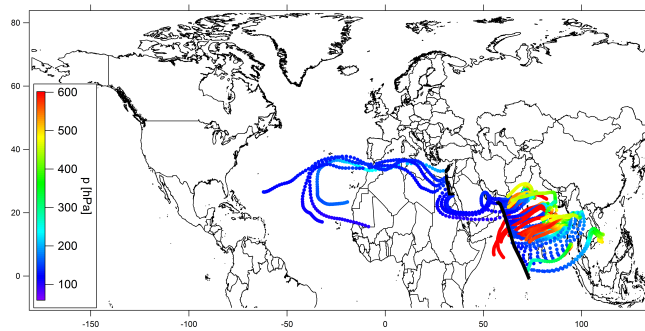
(a)



(b)

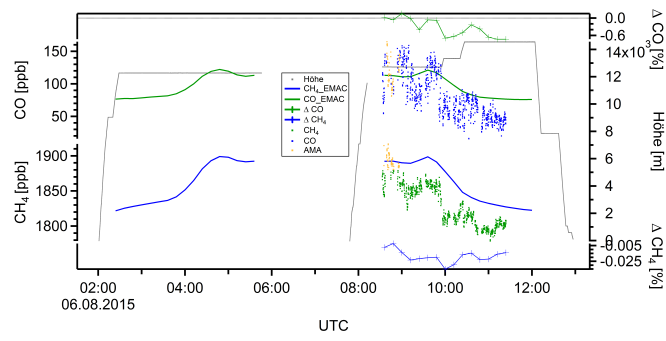


(c)

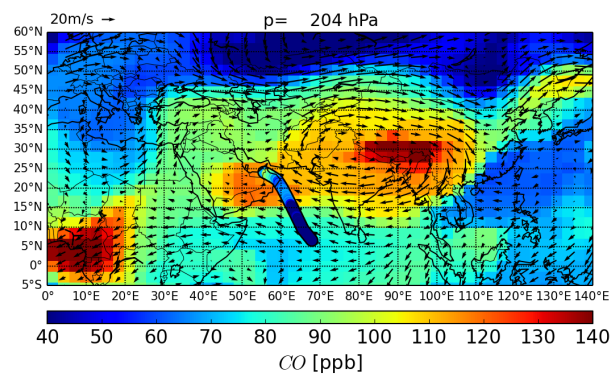


(d)

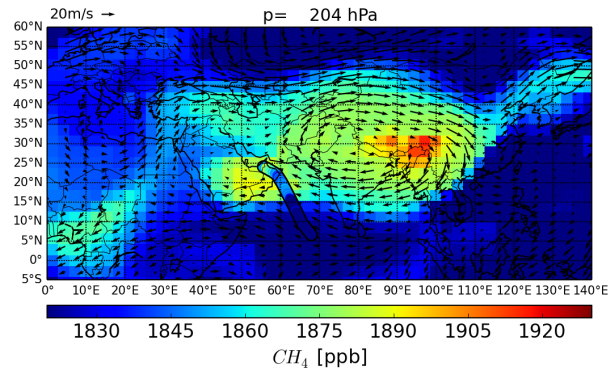
Abbildung A.4.: Flug 11 (01.08.2015): Transferflug von Paphos nach Gan.



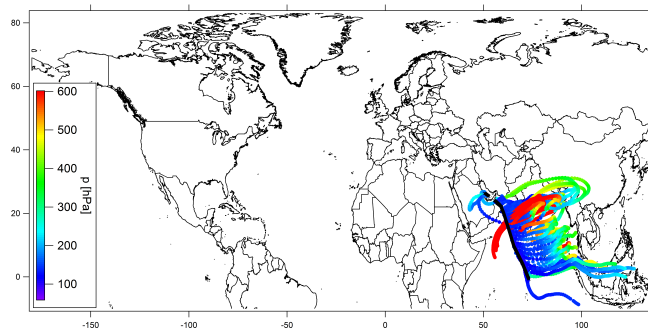
(a)



(b)

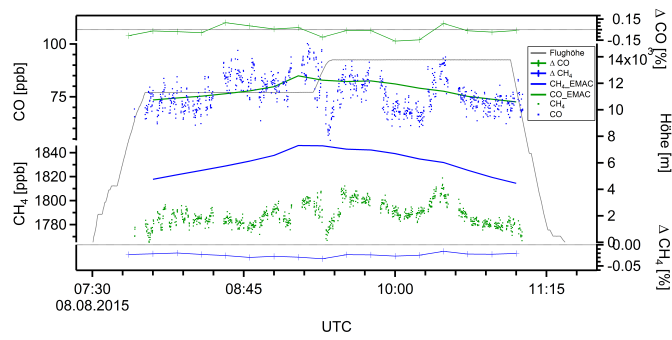


(c)

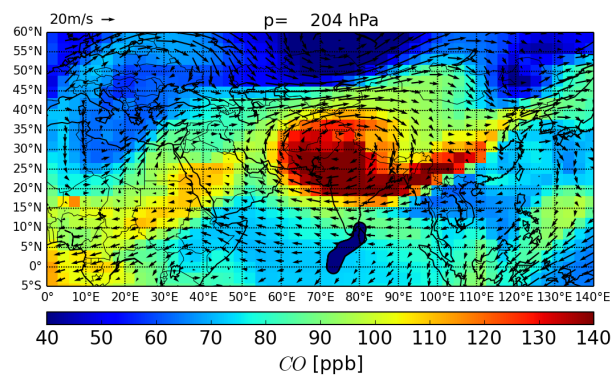


(d)

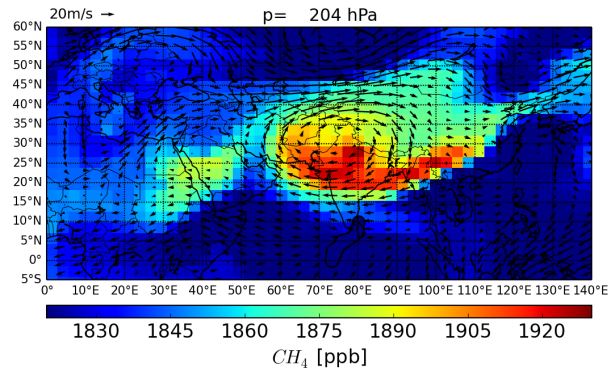
Abbildung A.5.: Flug 12/13 (06.08.2015): Messflug von Gan nach Bahrain und zurück nach Gan.



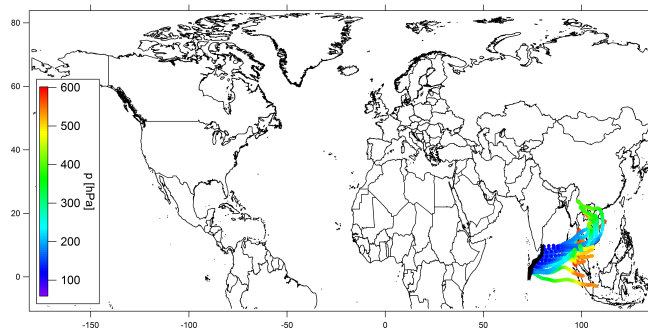
(a)



(b)

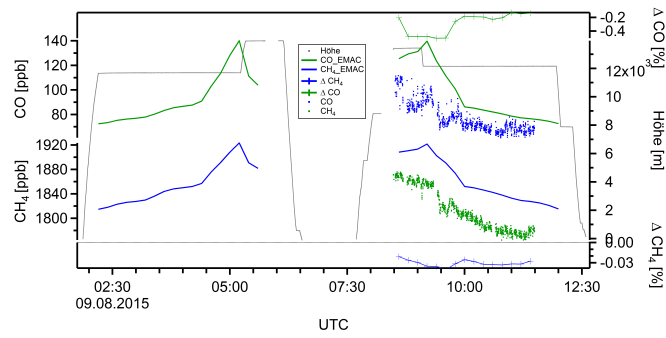


(c)

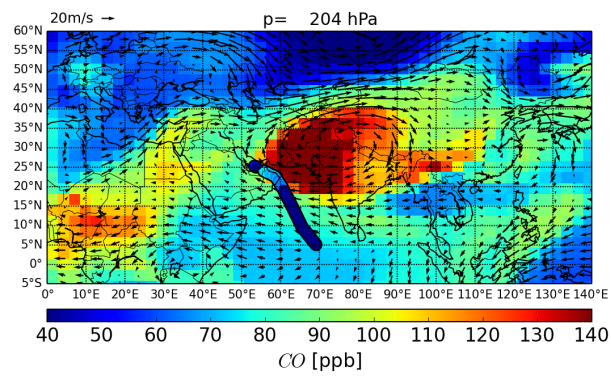


(d)

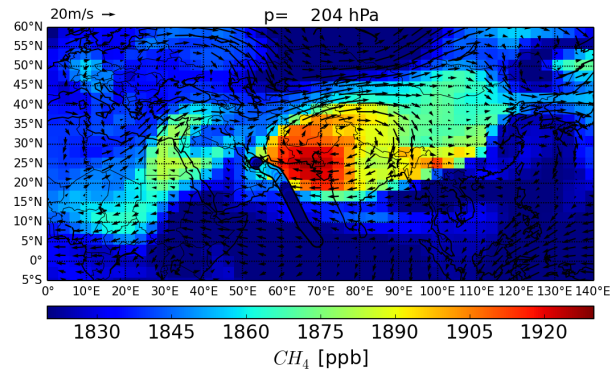
Abbildung A.6.: Flug 14 (08.08.2015): Messflug von Gan Richtung Sri Lanka und zurück nach Gan.



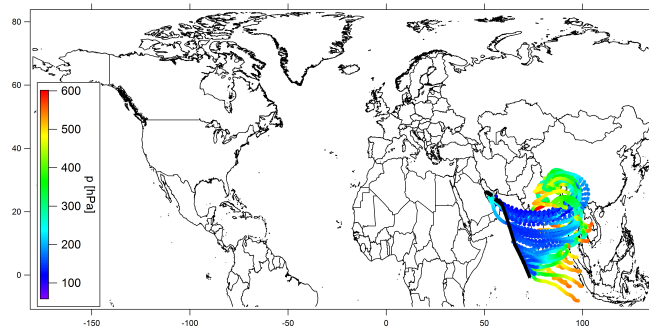
(a)



(b)

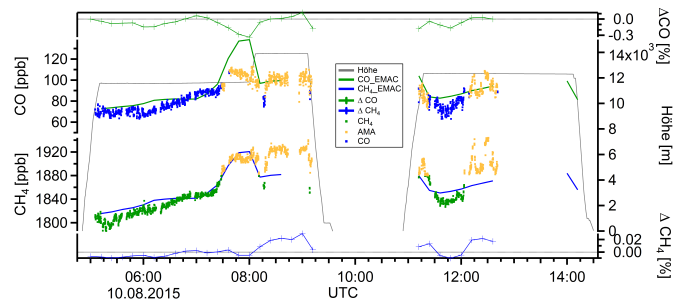


(c)

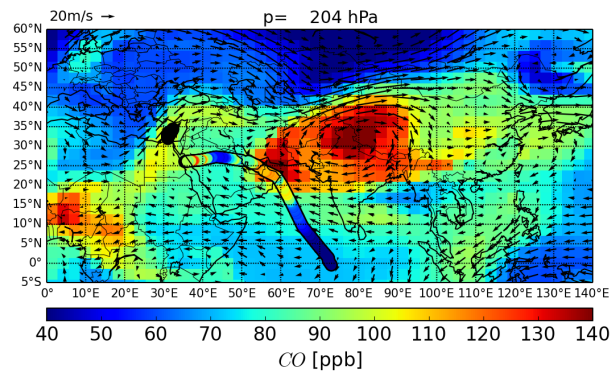


(d)

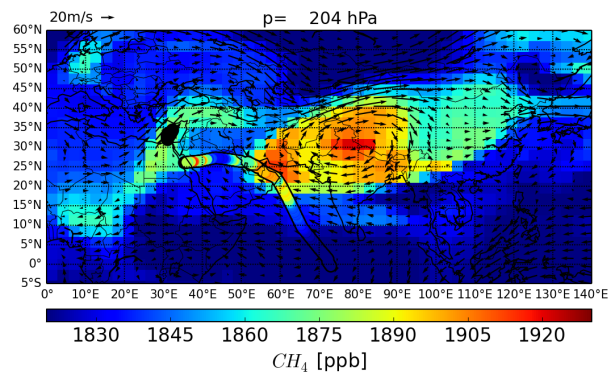
Abbildung A.7.: Flug 15/16 (09.08.2015): Messflug von Gan nach Bahrain und zurück nach Gan.



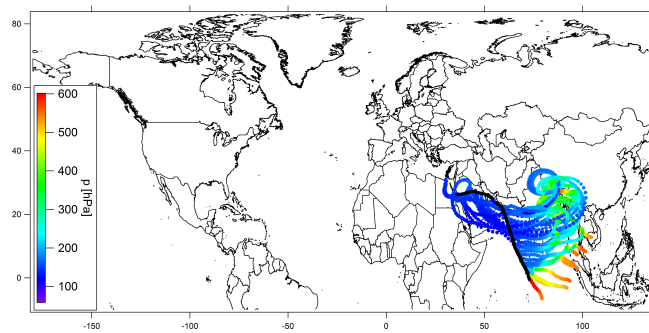
(a)



(b)

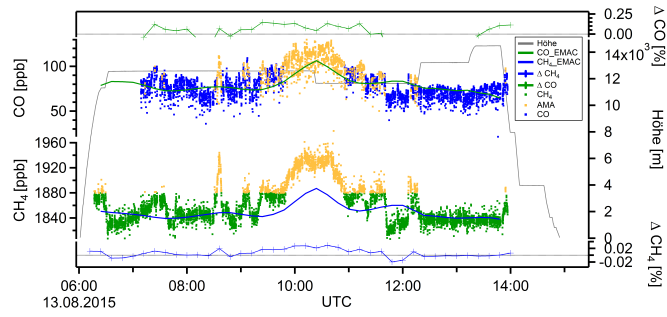


(c)

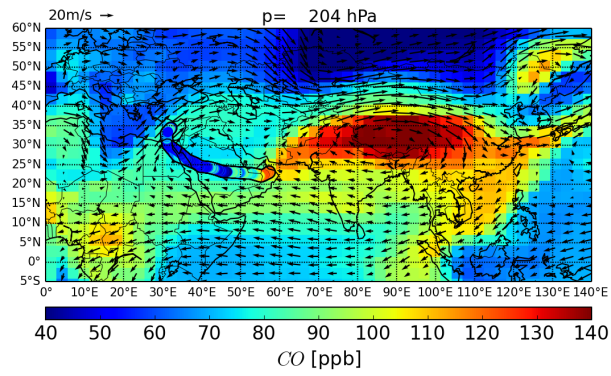


(d)

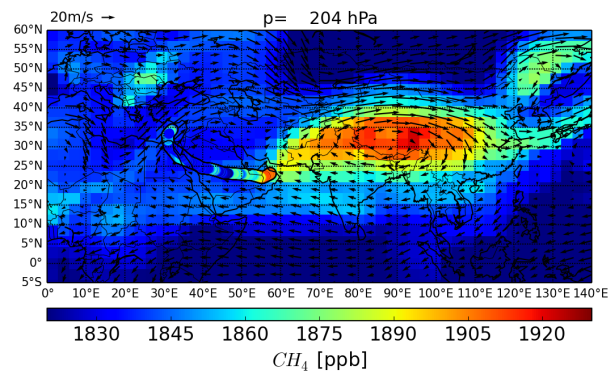
Abbildung A.8.: Flug 17/18 (10.08.2015): Transferflug von Gan nach Paphos, mit Zwischenstopp in Bahrain.



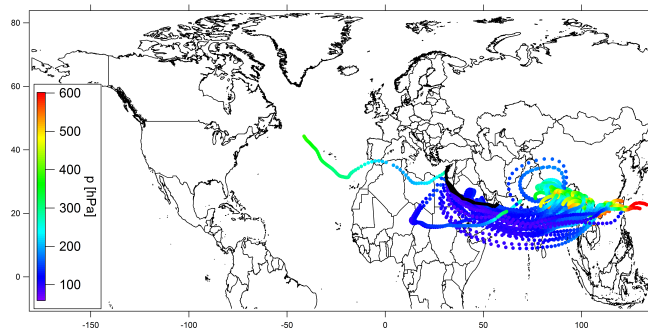
(a)



(b)

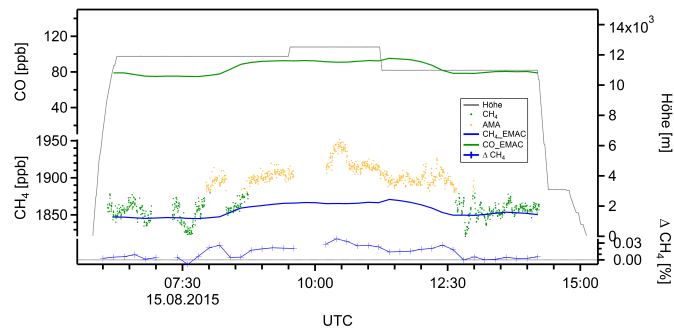


(c)

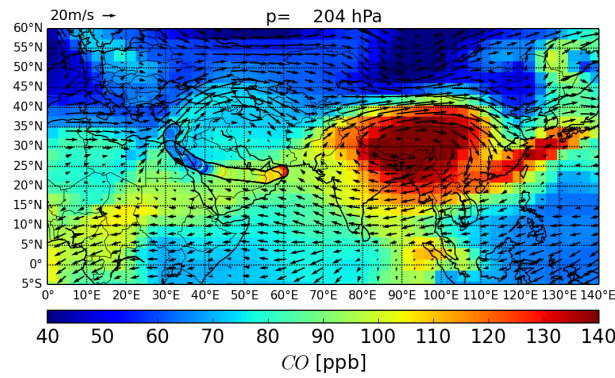


(d)

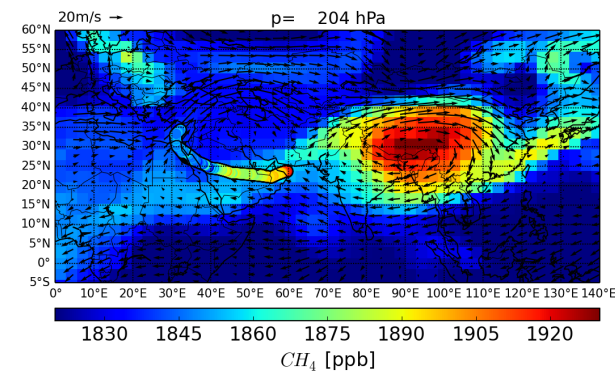
Abbildung A.9.: Flug 19 (13.08.2015): Messflug von Paphos Richtung Oman und zurück nach Paphos.



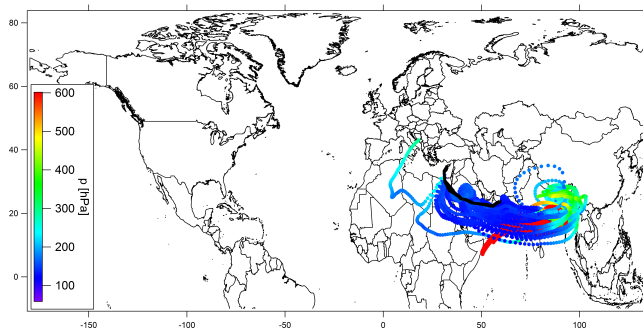
(a)



(b)

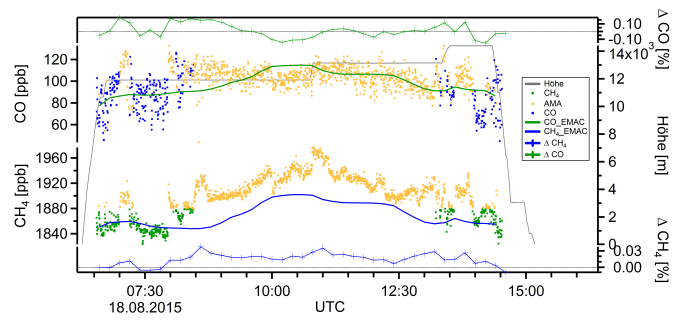


(c)

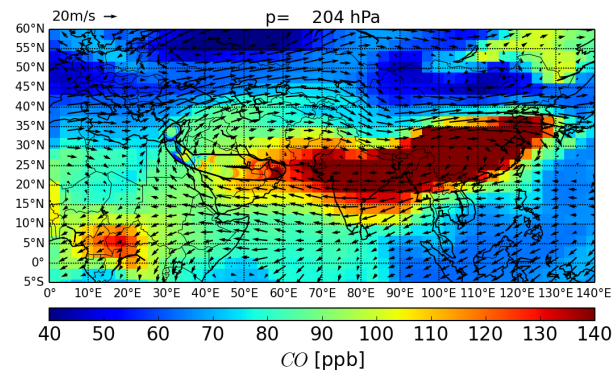


(d)

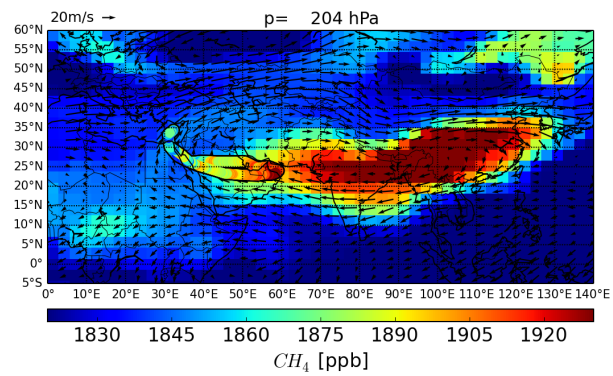
Abbildung A.10.: Flug 20 (15.08.2015): Messflug von Paphos Richtung Oman und zurück nach Paphos.



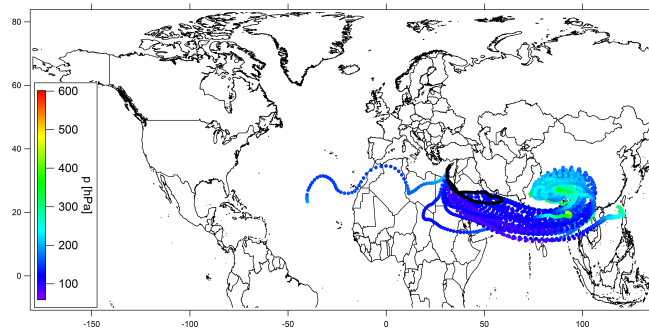
(a)



(b)



(c)



(d)

Abbildung A.11.: Flug 21 (18.08.2015): Messflug von Paphos Richtung Oman und zurück nach Paphos.



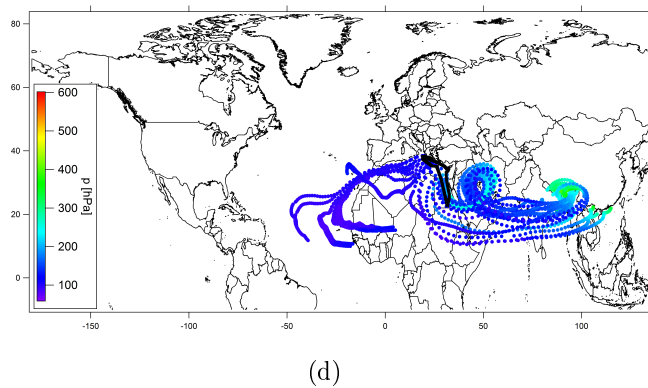
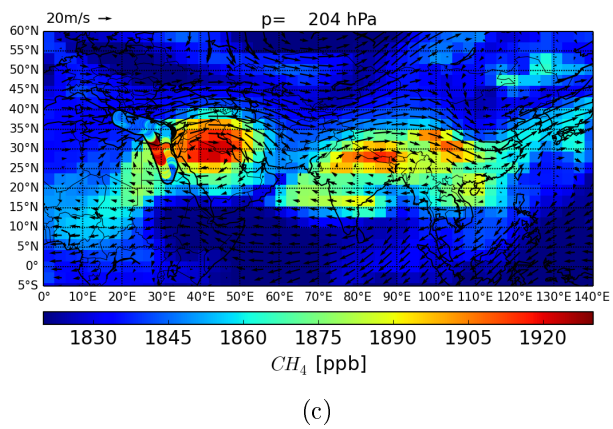
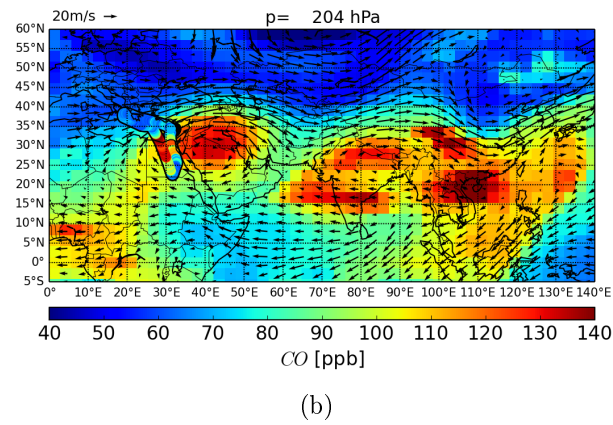
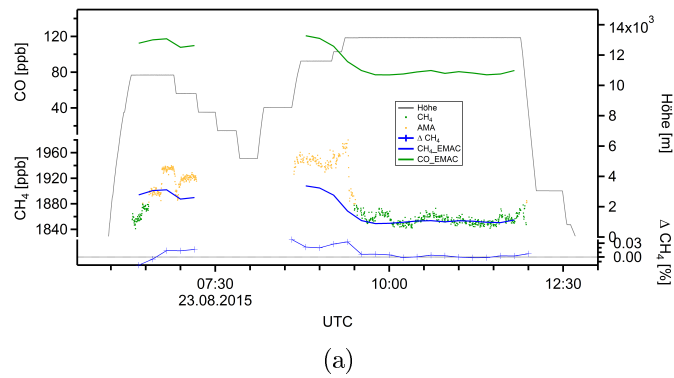
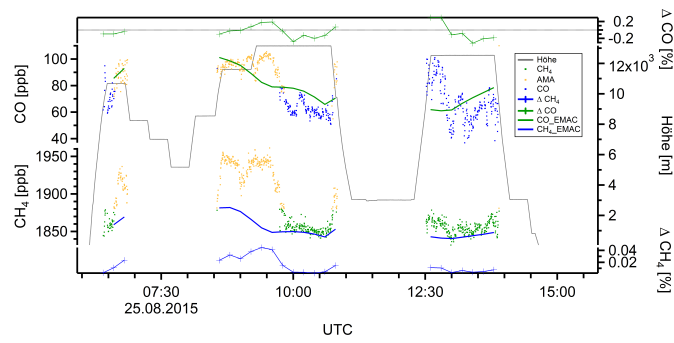
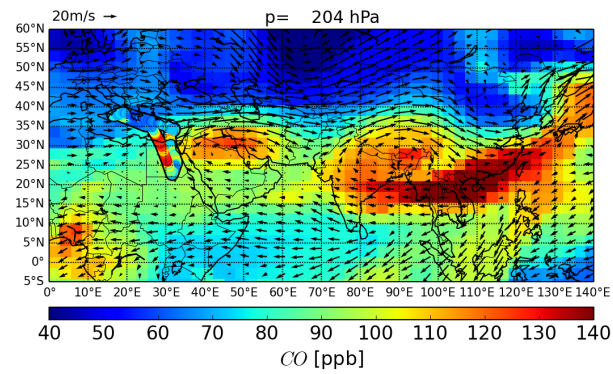


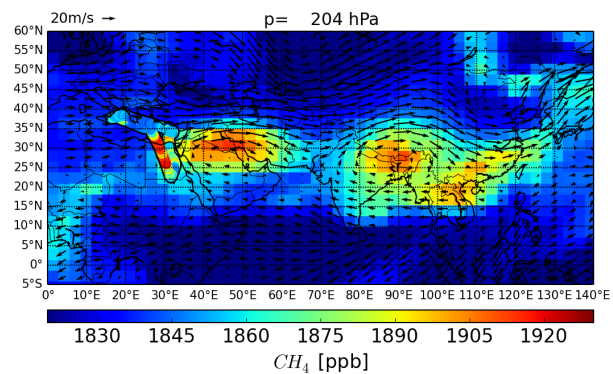
Abbildung A.12.: Flug 22 (23.08.2015): Messflug von Paphos über Ägypten, Griechenland, Mittelmeer und zurück nach Paphos; mit Profilen über Ägypten.



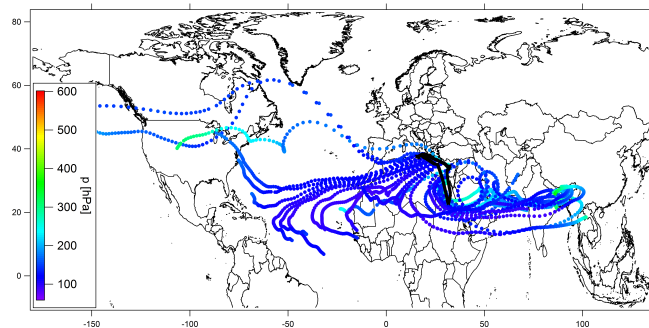
(a)



(b)

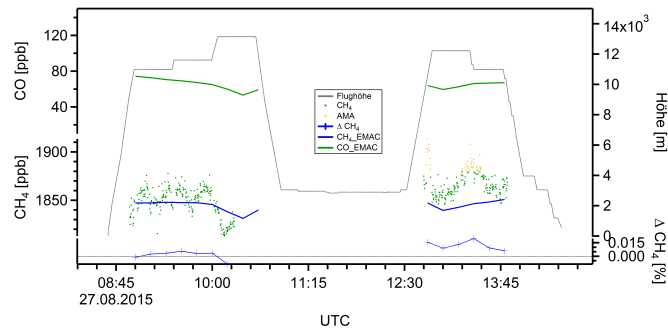


(c)

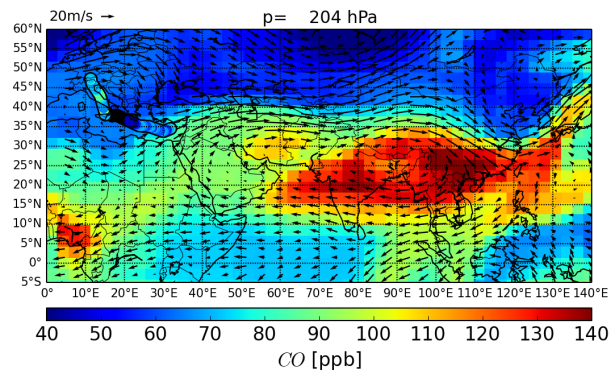


(d)

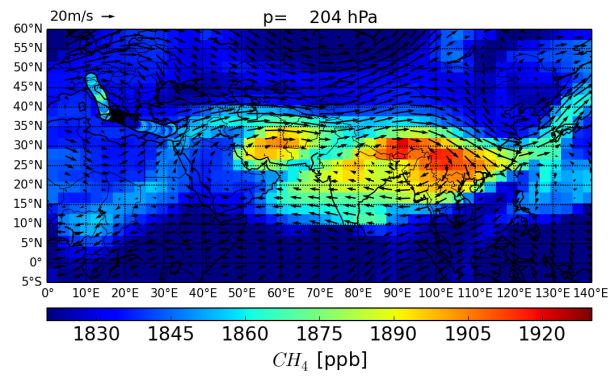
Abbildung A.13.: Flug 23 (25.08.2015): Messflug von Paphos über Ägypten, Ätna, Mittelmeer und zurück nach Paphos; mit Profilen über Ägypten und niedrigerem Fluglevel am Ätna.



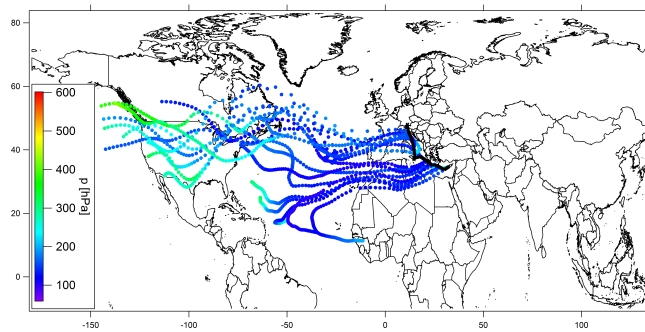
(a)



(b)



(c)



(d)

Abbildung A.14.: Flug 24 (27.08.2015): Transferflug von Paphos über den Ätna nach Oberpfaffenhofen; mit niedrigerem Fluglevel am Ätna.

## Literaturverzeichnis

- Atkinson, R., Baulch, D. L., Cox, R. A., Crowley, J. N., Hampson, R. F., Hynes, R. G., Jenkin, M. E., Rossi, M. J., Troe, J., and Subcommittee, I. (2006). Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry: Volume II - gas phase reactions of organic species. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11):3625–4055.
- Baker, A., Schuck, T., Slemr, F., Velthoven, P. v., Zahn, A., and Brenninkmeijer, C. (2011). Characterization of non-methane hydrocarbons in Asian summer monsoon outflow observed by the CARIBIC aircraft. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(2):503–518.
- Baker, A. K., Schuck, T. J., Brenninkmeijer, C. A., Rauthe-Schöch, A., Slemr, F., Velthoven, P. F., and Lelieveld, J. (2012). Estimating the contribution of monsoon-related biogenic production to methane emissions from South Asia using CARIBIC observations. *Geophysical Research Letters*, 39(10).
- Barret, B., Sauvage, B., Bennouna, Y., and Le Flochmoen, E. (2016). Upper-tropospheric CO and O<sub>3</sub> budget during the Asian summer monsoon. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(14):9129–9147.
- Bergamaschi, P., Houweling, S., Segers, A., Krol, M., Frankenberg, C., Scheepmaker, R., Dlugokencky, E., Wofsy, S., Kort, E., Sweeney, C., et al. (2013). Atmospheric CH<sub>4</sub> in the first decade of the 21st century: Inverse modeling analysis using SCIAMACHY satellite retrievals and NOAA surface measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118(13):7350–7369.
- Bergman, J. W., Fierli, F., Jensen, E. J., Honomichl, S., and Pan, L. L. (2013). Boundary layer sources for the Asian anticyclone: Regional contributions to a vertical conduit. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118(6):2560–2575.
- Bozem, H. (2010). *Photochemie der Troposphäre in niedrigen und mittleren Breiten: Die Rolle der Konvektion*. PhD thesis, Johannes Gutenberg Universität, Mainz.

- Dash, S. K. (2005). Monsoons and Monsoon Climate. In Oliver, J. E., editor, *Encyclopedia of World Climatology*, pages 509–516. Springer Netherlands, Dordrecht.
- Dethof, A., O’Neill, A., Slingo, J., and Smit, H. (1999). A mechanism for moistening the lower stratosphere involving the Asian summer monsoon. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 125(556):1079–1106.
- Dlugokencky, E. (2017). Globally averaged marine surface annual mean data for CH<sub>4</sub>. Technical report, NOAA/ESRL.
- Dlugokencky, E., Myers, R., Lang, P., Masarie, K., Crotwell, A., Thoning, K., Hall, B., Elkins, J., and Steele, L. (2005). Conversion of NOAA atmospheric dry air CH<sub>4</sub> mole fractions to a gravimetrically prepared standard scale. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 110(D18).
- Dutton, J. A. (2002). *The ceaseless wind: an introduction to the theory of atmospheric motion*. Courier Corporation.
- Eckhardt, S., Stohl, A., Wernli, H., James, P., Forster, C., and Spichtinger, N. (2004). A 15-year climatology of warm conveyor belts. *Journal of climate*, 17(1):218–237.
- Emanuel, K. A. and Živković-Rothman, M. (1999). Development and Evaluation of a Convection Scheme for Use in Climate Models. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56(11):1766–1782.
- Fadnavis, S., Semeniuk, K., Schultz, M., Kiefer, M., Mahajan, A., Pozzoli, L., and Sonbawane, S. (2015). Transport pathways of peroxyacetyl nitrate in the upper troposphere and lower stratosphere from different monsoon systems during the summer monsoon season. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(20):11477–11499.
- Folkens, I. and Martin, R. V. (2005). The vertical structure of tropical convection and its impact on the budgets of water vapor and ozone. *Journal of the atmospheric sciences*, 62(5):1560–1573.
- Fried, A., Crawford, J., Olson, J., Walega, J., Potter, W., Wert, B., Jordan, C., Anderson, B., Shetter, R., Lefer, B., et al. (2003). Airborne tunable diode laser measurements of formaldehyde during TRACE-P: Distributions and box model comparisons. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 108(D20).
- Garny, H. and Randel, W. (2013). Dynamic variability of the Asian monsoon anticyclone observed in potential vorticity and correlations with tracer distributions. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118(24).

- Gerbig, C., Schmitgen, S., Kley, D., Volz-Thomas, A., Dewey, K., and Haaks, D. (1999). An improved fast-response vacuum-UV resonance fluorescence CO instrument. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104(D1):1699–1704.
- Gottelman, A. and Forster, P. d. F. (2002). A climatology of the tropical tropopause layer. *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II*, 80(4B):911–924.
- Gottelman, A., Hoor, P., Pan, L., Randel, W., Hegglin, M. I., and Birner, T. (2011). The extratropical upper troposphere and lower stratosphere. *Reviews of Geophysics*, 49(3).
- Gottelman, A., Salby, M., and Sassi, F. (2002). Distribution and influence of convection in the tropical tropopause region. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 107(D10).
- Gill, A. (1980). Some simple solutions for heat-induced tropical circulation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 106(449):447–462.
- Girach, I. A., Ojha, N., Nair, P. R., Pozzer, A., Tiwari, Y. K., Kumar, K. R., and Lelieveld, J. (2017). Variations in O<sub>3</sub>, CO, and CH<sub>4</sub> over the Bay of Bengal during the summer monsoon season: shipborne measurements and model simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(1):257–275.
- Gottschaldt, K.-D., Schlager, H., Baumann, R., Bozem, H., Eyring, V., Hoor, P., Jöckel, P., Jurkat, T., Voigt, C., Zahn, A., and Ziereis, H. (2017). Trace gas composition in the Asian summer monsoon anticyclone: a case study based on aircraft observations and model simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(9):6091–6111.
- Gute, E. (2014). Optimierung des Laser-Absorptionsspektrometers TRISTAR für flugzeuggetragene HCHO Messungen. mathesis, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz.
- Holton, J. R. and Hakim, G. J. (2004). *An introduction to dynamic meteorology*, volume 88. Academic press.
- Hoskins, B. J. and Rodwell, M. J. (1995). A model of the Asian summer monsoon. Part I: The global scale. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 52(9):1329–1340.
- Hsu, C. J. and Plumb, R. A. (2000). Nonaxisymmetric thermally driven circulations and upper-tropospheric monsoon dynamics. *Journal of the atmospheric sciences*, 57(9):1255–1276.
- Jöckel, P., Kerkweg, A., Pozzer, A., Sander, R., Tost, H., Riede, H., Baumgaertner, A., Gromov, S., and Kern, B. (2010). Development cycle 2 of the Modular Earth Submodel System (MESSy2). *Geoscientific Model Development*, 3(2):717–752.

- Jiang, J. H., Livesey, N. J., Su, H., Neary, L., McConnell, J. C., and Richards, N. A. (2007). Connecting surface emissions, convective uplifting, and long-range transport of carbon monoxide in the upper troposphere: New observations from the Aura Microwave Limb Sounder. *Geophysical Research Letters*, 34(18).
- Jöckel, P., Sander, R., Kerkweg, A., Tost, H., and Lelieveld, J. (2005). Technical note: the modular earth submodel system (MESSY)-a new approach towards earth system modeling. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(2):433–444.
- Kavitha, M. and Nair, P. R. (2016). Region-dependent seasonal pattern of methane over Indian region as observed by SCIAMACHY. *Atmospheric Environment*, 131:316–325.
- Khalil, M. A. K. (2000). Atmospheric methane: an introduction. In *Atmospheric Methane*, pages 1–8. Springer.
- Kormann, R., Königstedt, R., Parchatka, U., Lelieveld, J., and Fischer, H. (2005). 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.
- Kraus, H. (2007). *Die Atmosphäre der Erde: Eine Einführung in die Meteorologie*. Springer-Verlag.
- Krishnamurti, T. and Ardanuy, P. (1980). The 10 to 20-day westward propagating mode and “Breaks in the Monsoons”. *Tellus*, 32(1):15–26.
- Lau, W. K. M., Waliser, D. E., and Goswami, B. N. (2012). *South Asian monsoon*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg. Ref für Kapitel 2.
- Lawrence, M. and Lelieveld, J. (2010). Atmospheric pollutant outflow from southern Asia: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(22):11017.
- Lelieveld, J., Berresheim, H., Borrmann, S., Crutzen, P., Dentener, F., Fischer, H., Feichter, J., Flatau, P., Heland, J., Holzinger, R., et al. (2002). Global air pollution crossroads over the Mediterranean. *Science*, 298(5594):794–799.
- Lelieveld, J., Gromov, S., Pozzer, A., and Taraborrelli, D. (2016). Global tropospheric hydroxyl distribution, budget and reactivity. *Atmos. Chem. Phys*, 16:12477–12493.
- Li, Q., Jiang, J. H., Wu, D. L., Read, W. G., Livesey, N. J., Waters, J. W., Zhang, Y., Wang, B., Filipiak, M. J., Davis, C. P., Turquety, S., Wu, S., Park, R. J., Yantosca, R. M., and Jacob, D. J. (2005). Convective outflow of South Asian pollution: A global CTM simulation compared with EOS MLS observations. *Geophysical Research Letters*, 32(14):n/a–n/a. L14826.

- Naik, V., Voulgarakis, A., Fiore, A. M., Horowitz, L. W., Lamarque, J.-F., Lin, M., Prather, M. J., Young, P., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., et al. (2013). Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(10):5277–5298.
- Nützel, M., Dameris, M., and Garny, H. (2016). Movement, drivers and bimodality of the South Asian High. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(22):14755–14774.
- Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., and Hayasaka, T. (2007). An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(16):4419–4444.
- Olivier, J. G., Jjm, B., Peters, J. A., Bakker, J., Visschedijk, A. J., and Bloos, J. J. (2002). Applications of EDGAR emission database for global atmospheric research. Technical report, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM).
- Pan, L. L., Honomichl, S. B., Kinnison, D. E., Abalos, M., Randel, W. J., Bergman, J. W., and Bian, J. (2016). Transport of chemical tracers from the boundary layer to stratosphere associated with the dynamics of the Asian summer monsoon. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 121(23):14,159–14,174.
- Pandis, S. N. and Seinfeld, J. H. (2006). *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change*. Wiley.
- Park, M., Randel, W. J., Emmons, L. K., Bernath, P. F., Walker, K. A., and Boone, C. D. (2008). Chemical isolation in the Asian monsoon anticyclone observed in Atmospheric Chemistry Experiment (ACE-FTS) data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(3):757–764.
- Park, M., Randel, W. J., Emmons, L. K., and Livesey, N. J. (2009). Transport pathways of carbon monoxide in the Asian summer monsoon diagnosed from Model of Ozone and Related Tracers (MOZART). *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 114(D8).
- Park, M., Randel, W. J., Gettelman, A., Massie, S. T., and Jiang, J. H. (2007). Transport above the Asian summer monsoon anticyclone inferred from Aura Microwave Limb Sounder tracers. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112(D16).
- Park, M., Randel, W. J., Kinnison, D. E., Garcia, R. R., and Choi, W. (2004). Seasonal variation of methane, water vapor, and nitrogen oxides near the tropopause: Satellite observations and model simulations. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109(D3).



- Petterssen, S. (1940). *Weather analysis and forecasting*, pages 221–223. McGraw-Hill Book Company, Inc.; New York.
- Platnick, S. (2015). MODIS/Aqua Aerosol Cloud Water Vapor Ozone Daily L3 Global 1Deg CMG. NASA MODIS Adaptive Processing System. data source, Goddard Space Flight Center.
- Ploeger, F., Gottschling, C., Griessbach, S., Grooß, J.-U., Guenther, G., Konopka, P., Müller, R., Riese, M., Stroh, F., Tao, M., et al. (2015). A potential vorticity-based determination of the transport barrier in the Asian summer monsoon anticyclone. *Atmospheric chemistry and physics*, 15(22):13145–13159.
- Popovic, J. M. and Plumb, R. A. (2001). Eddy shedding from the upper-tropospheric Asian monsoon anticyclone. *Journal of the atmospheric sciences*, 58(1):93–104.
- Randel, W. J., Pan, L. L., and Bian, J. (2016). Workshop on dynamics, transport and chemistry of the UTLS Asian Monsoon. *Advances in Atmospheric Sciences*, 33(9):1096–1098.
- Randel, W. J. and Park, M. (2006). Deep convective influence on the Asian summer monsoon anticyclone and associated tracer variability observed with Atmospheric Infrared Sounder (AIRS). *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 111(D12).
- Rauthe-Schöch, A., Baker, A. K., Schuck, T. J., Brenninkmeijer, C. A., Zahn, A., Hermann, M., Stratmann, G., Ziereis, H., van Velthoven, P. F., and Lelieveld, J. (2016). Trapping, chemistry, and export of trace gases in the South Asian summer monsoon observed during CARIBIC flights in 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(5):3609–3629.
- Roeckner, E., Bäuml, G., Bonaventura, L., Brokopf, R., Esch, M., Giorgetta, M., Hagemann, S., Kirchner, I., Kornblueh, L., Manzini, E., et al. (2003). The atmospheric general circulation model ECHAM 5. PART I: Model description. Technical report, Max-Planck-Institute for Meteorology.
- Schaefer, H., Fletcher, S. E. M., Veidt, C., Lassey, K. R., Brailsford, G. W., Bromley, T. M., Dlugokencky, E. J., Michel, S. E., Miller, J. B., Levin, I., Lowe, D. C., Martin, R. J., Vaughn, B. H., and White, J. W. C. (2016). A 21st-century shift from fossil-fuel to biogenic methane emissions indicated by  $^{13}\text{CH}_4$ . *Science*, 352(6281):80–84.
- Scheeren, H., Lelieveld, J., Roelofs, G., Williams, J., Fischer, H., Reus, M. d., De Gouw, J., Warneke, C., Holzinger, R., Schlager, H., et al. (2003). The impact of monsoon outflow from India and Southeast Asia in the upper troposphere over the eastern Mediterranean. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3(5):1589–1608.

- Schiller, C., Bozem, H., Gurk, C., Parchatka, U., Königstedt, R., Harris, G., Lelieveld, J., and Fischer, H. (2008). Applications of quantum cascade lasers for sensitive trace gas measurements of CO, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O and HCHO. *Applied Physics B*, 92(3):419–430.
- Schuck, T., Brenninkmeijer, C., Slemr, F., Xueref-Remy, I., and Zahn, A. (2009). Greenhouse gas analysis of air samples collected onboard the CARIBIC passenger aircraft. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2(2):449–464.
- Schuck, T., Ishijima, K., Patra, P., Baker, A., Machida, T., Matsueda, H., Sawa, Y., Umezawa, T., Brenninkmeijer, C., and Lelieveld, J. (2012). Distribution of methane in the tropical upper troposphere measured by CARIBIC and CONTRAIL aircraft. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 117(D19).
- Stehr, J., Ball, W., Dickerson, R., Doddridge, B., Piety, C., and Johnson, J. (2002). Latitudinal gradients in O<sub>3</sub> and CO during INDOEX 1999. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 107(D19).
- Stickler, A., Fischer, H., Williams, J., De Reus, M., Sander, R., Lawrence, M., Crowley, J., and Lelieveld, J. (2006). Influence of summertime deep convection on formaldehyde in the middle and upper troposphere over Europe. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 111(D14).
- Stohl, A. (1998). Computation, accuracy and applications of trajectories—a review and bibliography. *Atmospheric Environment*, 32(6):947–966.
- Stohl, A., Eckhardt, S., Forster, C., James, P., Spichtinger, N., and Seibert, P. (2002). A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurements. *Atmospheric Environment*, 36:4635–4648.
- Stohl, A., Forster, C., Eckhardt, S., Spichtinger, N., Huntrieser, H., Heland, J., Schlager, H., Wilhelm, S., Arnold, F., and Cooper, O. (2003). A backward modeling study of intercontinental pollution transport using aircraft measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 108(D12).
- Stohl, A., Hittenberger, M., and Wotawa, G. (1998). Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data. *Atmospheric Environment*, 32(24):4245–4264.
- Stohl, A., SEIBERT, P., and FORSTER, C. (1999). The FLEXPART Particle Dispersion Model, Version 3.1, User Guide. *Lehrstuhl für Bioklimatologie and Immissionsforschung, University of Munich, AmHochanger*, 13:85354.

- Stohl, A., Sodemann, Eckhardt, and Frank (2010). *The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 8.2*.
- Stohl, A. and Trickl, T. (1999). A textbook example of long-range transport: Simultaneous observation of ozone maxima of stratospheric and North American origin in the free troposphere over Europe. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104(D23):30445–30462.
- van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Mu, M., Kasibhatla, P. S., Morton, D. C., DeFries, R. S., Jin, Y., and van Leeuwen, T. T. (2010). Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(23):11707–11735.
- Van Vuuren, D. P., Edmonds, J., Kainuma, M., Riahi, K., Thomson, A., Hibbard, K., Hurtt, G. C., Kram, T., Krey, V., Lamarque, J.-F., et al. (2011). The representative concentration pathways: an overview. *Climatic change*, 109(1-2):5.
- Vogelezang, D. H. and Holtslag, A. A. (1996). Evaluation and model impacts of alternative boundary-layer height formulations. *Boundary-Layer Meteorology*, 81(3):245–269.
- Waliser, D. E. and Gautier, C. (1993). A satellite-derived climatology of the ITCZ. *Journal of Climate*, 6(11):2162–2174.
- White, J. U. (1976). Very long optical paths in air. *JOSA*, 66(5):411–416.
- WMO (2016). The State of Greenhouse Gases in the Atmosphere Based on Global Observations through 2015. *Greenhouse Gas Bulletin*.
- Xiao, Y., Jacob, D. J., and Turquety, S. (2007). Atmospheric acetylene and its relationship with CO as an indicator of air mass age. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112(D12).
- Xiong, X., Houweling, S., Wei, J., Maddy, E., Sun, F., and Barnet, C. (2009). Methane plume over south Asia during the monsoon season: satellite observation and model simulation. *Atmospheric chemistry and physics*, 9(3):783–794.
- Yan, R.-C., Bian, J.-C., and Fan, Q.-J. (2011). The impact of the South Asia high bimodality on the chemical composition of the upper troposphere and lower stratosphere. *Atmospheric and Oceanic Science Letters*, 4(4):229–234.
- Yan, Y. Y. (2005). Intertropical convergence zone (itcz). In *Encyclopedia of World Climatology*, pages 429–432. Springer.

Zhang, Q., Wu, G., and Qian, Y. (2002). The bimodality of the 100 hPa South Asia High and its relationship to the climate anomaly over East Asia in summer. *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II*, 80(4):733–744.