

**Entwicklung und Evaluierung einer
Modellhierarchie zur Simulation der
aktinischen Strahlung in aerosolbelasteter
und bewölkter Atmosphäre**

Dissertation zur Erlangung des Grades
„Doktor der Naturwissenschaften“
am Fachbereich Physik
der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

Barbara Früh
geboren in Ludwigshafen am Rhein

Mainz 2000

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|-----------|
| Einleitung | 1 |
| 1 Der Strahlungstransport in der Atmosphäre | 7 |
| 1.1 Die solare Einstrahlung | 10 |
| 1.2 Absorption in der Troposphäre | 12 |
| 1.3 Streuung in der Troposphäre | 13 |
| 1.3.1 Mie-Streuung | 16 |
| 1.3.2 Rayleigh-Streuung | 19 |
| 1.4 Die Herleitung der Strahlungstransportgleichung | 20 |
| 2 Die optischen Eigenschaften der atmosphärischen Extingenten | 25 |
| 2.1 Luftmoleküle | 26 |
| 2.2 Mie-Partikel | 28 |
| 2.2.1 Aerosolpartikel | 28 |
| 2.2.2 Wolkentropfen | 39 |
| 2.2.3 Die Strahlungseigenschaften der Mie-Partikel | 42 |
| 2.3 Die Strahlungseigenschaften aller Extingenten | 46 |
| 3 Strahlungstransportmodelle | 47 |
| 3.1 Die 1-dimensionale Lösung | 49 |
| 3.1.1 Das δ -Zwei-Strom-Verfahren (PIFM) | 50 |
| 3.1.2 Das Diskrete-Ordinaten-Verfahren | 53 |
| 3.1.3 Das δ -Vier-Strom-Verfahren | 56 |
| 3.2 Die 3-dimensionale Lösung - SHDOM | 57 |
| 4 Das Modell zur Berechnung der aktinischen Strahlung | 61 |
| 4.1 Der aktinische Fluss | 62 |
| 4.2 Die Photodissoziationsfrequenzen | 65 |

| | | |
|----------|--|-----------|
| 4.2.1 | Die Photodissoziation von Stickstoffdioxid | 66 |
| 4.2.2 | Die Photodissoziation von Ozon in O(¹ D) | 66 |
| 4.3 | Die spektrale Auflösung | 70 |
| 4.4 | Die Modelleingabe | 71 |
| 5 | Sensitivitätsstudien | 76 |
| 5.1 | Ein Vergleich der unterschiedlichen Lösungsmethoden | 76 |
| 5.2 | Der Einfluss von Ozon | 79 |
| 5.2.1 | Spektraler Vergleich von F_{act} | 83 |
| 5.2.2 | Vergleich der Photodissoziationsfrequenzen | 85 |
| 5.2.3 | Auswirkung des Sonnenzenitwinkels am Boden | 87 |
| 5.3 | Der Einfluss von Stickstoffdioxid | 88 |
| 5.3.1 | Spektraler Vergleich von F_{act} | 90 |
| 5.3.2 | Vergleich der Photodissoziationsfrequenzen | 91 |
| 5.3.3 | Auswirkung des NO ₂ am Boden bei Variation des Sonnenzenitwinkels | 91 |
| 5.4 | Der Einfluss der Aerosolpartikel | 93 |
| 5.4.1 | Die Auswirkung von ruralem und urbanem Aerosol | 94 |
| 5.4.2 | Variation der Aerosolanzahlkonzentration | 98 |
| 5.4.3 | Variation der Aerosolgrößenverteilung | 100 |
| 5.4.4 | Variation der chemischen Zusammensetzung | 103 |
| 5.4.5 | Variation der relativen Feuchte | 105 |
| 5.4.6 | Variation der Löslichkeit der Partikel | 111 |
| 5.4.7 | Variation des Sonnenzenitwinkels in aerosolbelasteter Atmosphäre | 114 |
| 5.5 | Der Einfluss der Wolkentropfen | 115 |
| 5.5.1 | Variation der Tropfengrößenverteilung | 115 |
| 5.5.2 | Variation des Sonnenzenitwinkels in bewölkter Atmosphäre | 119 |
| 5.5.3 | Aerosoleinfluss in bewölkter Atmosphäre | 122 |
| 5.5.4 | Übereinanderliegende Wolkenschichten | 127 |
| 5.5.5 | Vertikal veränderlicher Flüssigwassergehalt | 129 |
| 5.6 | Weitere Sensitivitätsstudien | 132 |
| 5.7 | Zusammenfassende Bemerkungen | 133 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 6 | Evaluierung des 1-dimensionalen Modells | 136 |
| 6.1 | Spektraler Vergleich des aktinischen Flusses am Boden | 136 |
| 6.1.1 | Das Vergleichsmodell | 137 |
| 6.1.2 | Die Modelleingabe | 139 |
| 6.1.3 | Ergebnisse des Modellvergleichs | 140 |
| 6.1.4 | Zusammenfassende Bemerkungen | 144 |
| 6.2 | Vergleich simulierter und gemessener Vertikalprofile von F_{act} in bewölkter Atmosphäre | 144 |
| 6.2.1 | Optisch dicke Wolke | 145 |
| 6.2.2 | Optisch dünne Wolke | 147 |
| 6.2.3 | Vergleich der beiden Szenarien | 149 |
| 6.3 | Vergleich simulierter und gemessener $J(\text{NO}_2)$ -Vertikalprofile | 149 |
| 6.3.1 | Wolkenlose Bedingungen – 6. Dezember 1996 | 153 |
| 6.3.2 | Optisch dicke Wolke – 9. Dezember 1996 | 158 |
| 6.3.3 | Optisch dünne Wolke – 11. Dezember 1996 | 164 |
| 6.3.4 | Zusammenfassende Bemerkungen | 167 |
| 7 | Die BERLIOZ-Messkampagne | 168 |
| 7.1 | Die Modelleingabe | 169 |
| 7.2 | Spektraler Vergleich simulierter und gemessener aktinischer Flüsse am Boden | 177 |
| 7.3 | Vergleich simulierter und gemessener Tagesgänge von $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$ | 182 |
| 7.4 | Zusammenfassende Bemerkungen | 190 |
| 8 | Die Auswirkungen durchbrochener Bewölkung auf das Strahlungsfeld | 192 |
| 8.1 | Motivation | 193 |
| 8.2 | Die Modelleingabe | 193 |
| 8.3 | Das 2-dimensionale $J(\text{NO}_2)$ -Feld | 195 |
| 8.4 | Das 2-dimensionale $J(\text{NO}_2)$ -Feld mit offenen Randbedingungen | 198 |
| 8.5 | Das 2-dimensionale $J(\text{NO}_2)$ -Feld unter Aerosoleinfluss | 199 |
| 8.6 | Vergleich 2-dimensionaler Simulationen zu „Independent Pixel Simulationen“ | 201 |
| 8.7 | Tagesgang von $J(\text{NO}_2)$ bei partieller Bewölkung | 207 |

| | | |
|-----------|--|------------|
| 8.7.1 | Untersuchung der Variationsbreite von $J_S(\text{NO}_2)$ bei unterschiedlichen Bedeckungsgraden und Sonnenzenitwinkeln | 210 |
| 8.7.2 | Vergleich von J_{mit} zu $J_S(\text{NO}_2)$ einer unbewölkten Atmosphäre | 213 |
| 8.8 | Zusammenfassende Bemerkungen | 216 |
| 9 | 3-dimensionale Simulation einer Wolkenlücke | 218 |
| 9.1 | Der Messflug | 218 |
| 9.2 | Die Modelleingabe | 220 |
| 9.3 | Simulationsergebnisse | 221 |
| 9.4 | Zusammenfassende Bemerkungen | 225 |
| 10 | Zusammenfassung | 227 |
| 11 | Ausblick | 231 |
| 11.1 | Mie-Theorie | 231 |
| 11.2 | Möglichkeiten zur Verbesserung der 1-dimensionalen Strahlungstransportmodelle | 232 |
| 11.3 | Weitere Sensitivitätsstudien mit 3-dimensionalen Strahlungstransportmodellen | 233 |
| 11.4 | Möglichkeiten zur Reduzierung des Speicherplatzbedarfs und der Rechenzeit von SHDOM | 235 |
| 11.5 | Evaluierung der 3-dimensionalen Strahlungstransportmodelle | 237 |
| | Symbole | 238 |
| | Physikalische Konstanten | 243 |
| | Literaturverzeichnis | 244 |

Einleitung

Die Sonne ist der Ursprung jeglichen Lebens auf der Erde. Sie sendet elektromagnetische Strahlung aus, welche sich über den Wellenlängenbereich der energiearmen infraroten Strahlung über den der sichtbaren Strahlung bis hin zur energiereichen ultravioletten (UV-) Strahlung erstreckt.

Der größte Teil des solaren Spektrums wirkt sich positiv auf das Leben auf der Erde aus, da die Sonne Energie in Form von Licht und Wärme spendet. Zu etwa 13% der solaren Energie und etwa 6% des Spektrums, bezogen auf die Wellenlänge, besteht die Solarstrahlung aus der energiereichen UV-Strahlung, welche sich in höheren Dosen schädigend auf das Leben auf der Erde auswirkt. Beim Menschen verursacht die UV-Strahlung Hautalterung, Allergien oder sogar Hautkarzinome.

Die Atmosphäre der Erde ist ein natürliches Filter für die UV-Strahlung. Dabei ist die stratosphärische Ozonschicht in 20 km bis 25 km Höhe von besonderer Bedeutung, da Ozon durch Absorption der UV-Strahlung in atomaren und molekularen Sauerstoff dissoziiert. Dadurch wird die solare UV-Strahlung bis zu einer Wellenlänge von 290 nm fast vollständig absorbiert und kann somit nicht tiefer in die Atmosphäre eindringen. Die anthropogen verursachte Abnahme der Ozonkonzentration in der stratosphärischen Ozonschicht hat einen Anstieg der UV-Strahlung in der Troposphäre zur Folge.

Neben Ozon können auch andere Moleküle in der Atmosphäre durch die Absorption solarer Strahlung aufgespalten werden. Die relativ hohe Energie, welche zur Dissoziation atmosphärischer Moleküle notwendig ist, bewirkt jedoch, dass nur weniger als 1% der solaren Photonen photochemische Prozesse auslösen können (*Brasseur und Solomon*, 1986). Dieser Anteil der Strahlung befindet sich im kurzwelligen Spektrum der Sonne bis zu einer Wellenlänge von etwa 850 nm, in welchem die Photonenenergie sehr hoch ist. Sie wird als aktinische, d.h. photochemisch relevante, Strahlung bezeichnet. Die Frequenz mit welcher die Dissoziation durch solare Strahlung stattfindet, wird als Photodissoziationsfrequenz bezeichnet.

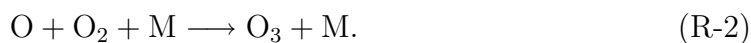
Wirkt das stratosphärische Ozon als Schutzschild zur Abwehr der schädigenden UV-Strahlung, so hat Ozon in der unteren Troposphäre toxische Wirkung auf Menschen, Fauna und Flora. Trotz der geringen Ozonkonzentration in der Atmosphäre haben Veränderungen sowohl der stratosphärischen als auch der troposphärischen Ozonkonzentration erhebliche Auswirkungen auf die terrestrische Biosphäre. Das Verständnis der in der Stratosphäre und Troposphäre stattfindenden Ozonproduktions- und Ozonabbaumechanismen ist eines der wichtigsten Ziele der aktuellen Umweltforschung. Nur unter Kenntnis dieser Mechanismen sind wirkungsvolle, vorbeugende Maßnahmen zur Verhinderung oder zumindest Verminderung der von einer Änderung der Ozonkonzentration ausgehenden Schäden möglich.

Atmosphärisches Ozon wird nicht direkt emittiert, sondern ausschließlich durch photochemische Prozesse gebildet. In der Stratosphäre wird molekularer Sauerstoff durch Absorption von solarer Strahlung mit Wellenlängen kleiner 242 nm in atomaren Sauerstoff dissoziiert. Dieser wiederum reagiert mit molekularem Sauerstoff zu Ozon. Das troposphärische Ozon wird teilweise aus der Stratosphäre in die Troposphäre transportiert, aber auch in der Troposphäre durch Photodissoziation von Stickstoffdioxid gebildet.

Die photochemische Bildung von troposphärischem Ozon verläuft über folgenden Reaktionszyklus:



Durch die photochemische Zersetzung von Stickstoffdioxid in Reaktion (R-1) entsteht atomarer Sauerstoff. Dieser reagiert wiederum mit Sauerstoffmolekülen zu Ozon, wobei ein Stoßpartner M nötig ist, um die überschüssige Energie abzutransportieren:



Das Ozon wiederum reagiert mit Stickstoffmonoxid zu molekularem Sauerstoff und Stickstoffdioxid:



Dieses natürliche Gleichgewicht in der Troposphäre wird jedoch durch anthropogenen Schadstoffeintrag gestört. Verbrennungsprozesse von fossilem Material und Biomasse führen zu einer Erhöhung der NO-Konzentration. Dies hat sowohl eine Verminderung der Ozonkonzentration in der Nähe der Quellen über Reaktion (R-3), als auch eine Erhöhung der NO₂-Konzentration durch Reaktionen mit HO₂ und anderen Peroxyradikalen zur Folge. Wegen der höheren Stabilität wird NO₂ auch

in ländlichere Gegenden transportiert, wo es über Reaktion (R-1) photochemisch abgebaut wird und damit den Ozonproduktionszyklus anregt.

Die troposphärische Ozonkonzentration ist also maßgebend durch die photochemische Zersetzung von Stickstoffdioxid bestimmt. Zur Bestimmung der Photodissoziationsfrequenz von NO_2 muss die zur Verfügung stehende Photonenenergie $h\nu$ bekannt sein, welche sich sowohl aus Messungen als auch aus Strahlungstransportrechnungen bestimmen lässt. Da Messungen nur eine Aussage über die aktuelle Situation an einem bestimmten Ort machen können, ist die Modellierung der Photodissoziationsfrequenzen eine grundlegende Voraussetzung für die Prognose von Ozonkonzentrationen. Die vorliegende Arbeit befasst sich daher mit der Modellierung der aktinischen Strahlung als physikalischer Basis zur Untersuchung photochemischer Prozesse.

Zur Modellierung des Strahlungstransports ist die Kenntnis der in der Atmosphäre vorhandenen Extingenten und deren Strahlungseigenschaften notwendig. Besonders wichtig sind dabei die Absorption durch Ozon, die Streuung und Absorption durch Aerosolpartikel und die Streuung durch Wolkentropfen. Diese Extingenten bestimmen die optische Dicke der Atmosphäre, als Maß für die in der Atmosphäre stattfindende Absorption und Streuung, und damit die Transmission der aktinischen Strahlung in der Troposphäre.

Die photochemisch relevante Strahlung wird durch den aktinischen Fluss beschrieben. Der aktinische Fluss ist ein Maß für den Strahlungsfluss aus allen Raumrichtungen, welcher normal zur Oberfläche in die Einheitskugel einfällt und somit chemischen Reaktionen zur Verfügung steht.

Der Einfluss der Aerosolpartikel auf die UV-Strahlung ist zu mehr als 80% auf die gesamte optische Dicke des Aerosols und die Einfachstreueralbedo zurückzuführen (*Reuder und Schwander, 1999*). Die Einfachstreueralbedo ist definiert als das Verhältnis zwischen Streuung und Extinktion (Summe aus Streuung und Absorption). Die Absorption durch Aerosolpartikel trägt gemittelt über niedrige und hohe Aerosolkonzentrationen 25% bis 30% zum gesamten Effekt des Aerosols auf die Strahlung bei. Die Winkelverteilung der an den Aerosolpartikeln gestreuten Strahlung und das Vertikalprofil der Extinktion sind von geringerer Bedeutung. Eine Aerosolschicht mit einer optischen Dicke von eins, zusammengesetzt aus stark vorwärts streuenden Partikeln erhöht den aktinischen Fluss an der Erdoberfläche bei kleinen Sonnenzenitwinkeln und einer Bodenbedo von 0.25 um 15% (*Michelangioli et al., 1992*).

Liao et al. (1999) untersuchten in ihren Sensitivitätsstudien unterschiedliche chemi-

sche Zusammensetzungen der Aerosolpartikel. Sie fanden heraus, dass Rußpartikel die Photodissoziationsfrequenz im gesamten Vertikalprofil reduzieren. Sulfatpartikel dagegen erhöhen die Photodissoziationsfrequenz oberhalb und im oberen Teil der Aerosolschicht. Im unteren Teil der Aerosolschicht wird die Photodissoziationsfrequenz reduziert.

Der Einfluss der Wolken auf die Strahlungseigenschaften der Atmosphäre ist wesentlich größer als der Einfluss der Aerosolpartikel. Mit einer einfachen Abschätzung des aktinischen Flusses in einer bewölkten Atmosphäre wurde der Einfluss von Wolken auf das Strahlungsfeld untersucht (*Madronich, 1987*). Oberhalb der Wolke findet grundsätzlich eine Erhöhung des aktinischen Flusses statt. Diese Erhöhung kann maximal den Faktor drei betragen. Der aktinische Fluss unterhalb der Wolke ist sehr stark von der Bodenalbedo, der optischen Dicke der Wolke und dem Sonnenzenitwinkel abhängig. Sensitivitätsstudien von *Ruggaber et al. (1994)* haben gezeigt, dass eine Wolke in 1 km bis 2 km Höhe mit einem Flüssigwasserweg von 300 gm^{-2} oberhalb der Wolke eine Verdopplung der Photodissoziationsfrequenz von NO_2 im Vergleich zu einer wolkenlosen Atmosphäre bewirkt. Diese Erhöhung ergab sich bei einem Sonnenzenitwinkel von 10° . Mit steigendem Sonnenzenitwinkel verminderte sich diese Erhöhung. Unterhalb der Wolke wurde die Photodissoziationsfrequenz um 75% vermindert.

Van Weele und Duynkerke (1993) leiteten aus in-situ Messungen der NO -, O_3 - und NO_2 -Konzentrationen das Vertikalprofil von $J(\text{NO}_2)$ ab. Dies ist durch die Annahme des photostationären Zustands von NO_2 mit Hilfe der Reaktionsrate möglich. Dieses in bewölkter Atmosphäre abgeleitete $J(\text{NO}_2)$ wurde mit Modellergebnissen verglichen. Zur Beschreibung der mikrophysikalischen Eigenschaften der Wolke wurde ein typischer Wert für den effektiven Radius der Wolkentropfen in Stratocumulus-Wolken von $10 \mu\text{m}$ angenommen. Aus diesen Untersuchungen konnte abgeleitet werden, dass das Vertikalprofil des aktinischen Flusses und damit auch von $J(\text{NO}_2)$ vom Sonnenzenitwinkel geprägt ist. Die optische Dicke der Wolke dagegen wirkt sich hauptsächlich auf die Größenordnung der Reduktion unterhalb der Wolke und der Erhöhung oberhalb aus. *Matthijsen et al. (1998)* erzielten ähnliche Abhängigkeiten von der optischen Dicke der Wolke, indem sie die mikrophysikalischen Eigenschaften der Wolke aus Messungen des Flüssigwassergehalts und des effektiven Radius ableiteten. Diese Wolkeneigenschaften dienten als Eingabe für Modellrechnungen zur Bestimmung von $J(\text{O}^1\text{D})$.

Die unterschiedlichen Sensitivitätsstudien beschreiben zwar die Auswirkungen von

Aerosolpartikeln und Wolken auf den aktinischen Fluss und die Photodissoziationsfrequenz von NO_2 wie sie von den Strahlungstransportmodellen berechnet wurden, der Vergleich mit entsprechenden Messungen der Strahlungsgrößen fehlt jedoch. Für eine Validierung der Strahlungstransportmodelle ist ein solcher Vergleich jedoch unumgänglich. Um diese Lücke zu füllen, wurde in dieser Arbeit zunächst ein Modell entwickelt, welches die optischen Eigenschaften der atmosphärischen Extingenten mit einer für die Bestimmung der Photodissoziationsfrequenzen notwendigen hohen spektralen Auflösung bestimmt. Ausgehend von den optischen Eigenschaften der einzelnen Extingenten lässt sich der Strahlungstransport in 1-, 2- oder 3-dimensionalen Gebieten der Atmosphäre berechnen. Im Anschluss an die Modellentwicklung wurde eine Evaluierung des 1-dimensionalen Strahlungstransportmodells durchgeführt. Dazu wurde zunächst ein Modellvergleich des aktinischen Flusses am Boden in unbewölkter Atmosphäre durchgeführt. Zum zweiten konnten gemessene Vertikalprofile des aktinischen Flusses mit entsprechenden Simulationsergebnissen in bewölkter Atmosphäre verglichen werden. Außerdem standen Vertikalprofile von $J(\text{NO}_2)$ in unbewölkter und bewölkter Atmosphäre zur Verfügung. Auch diese konnten erfolgreich mit den simulierten $J(\text{NO}_2)$ verglichen werden (*Früh et al.*, 2000a). In der Atmosphäre treten jedoch nicht nur ausreichend große Wolkenfelder auf, welche in guter Näherung als horizontal homogen angesehen werden können. Viel häufiger ist das Auftreten von partieller Bewölkung. Die Anwendung von 1-dimensionalen Modellen zur Bestimmung des mittleren Strahlungsfeldes in durchbrochener Bewölkung führt jedoch in Abhängigkeit vom Sonnenzenitwinkel und dem Bedeckungsgrad zu Fehlern von etwa $\pm 30\%$ (*Trautmann et al.*, 1999). Nur bei sehr großem Bedeckungsgrad, bei welchem lediglich Lücken in einer ansonsten fast homogenen Wolkendecke bleiben, wird der Unterschied zu den 1-dimensionalen Simulationen geringer. Dies ist besonders bei großen Sonnenzenitwinkeln der Fall (*Duda et al.*, 1996). Bei kleineren Bedeckungsgraden und Sonnenzenitwinkeln erfordern die großen Abweichungen die Verwendung von 3-dimensionalen Strahlungstransportmodellen.

Diese Arbeit gliedert sich in elf Kapitel. Die Kapitel 1 bis 4 beinhalten die theoretischen Grundlagen des Strahlungstransports. Im Einzelnen werden in Kapitel 1 zunächst die theoretischen Grundlagen der Strahlungstransporttheorie erläutert. Kapitel 2 beschreibt die Strahlungseigenschaften der atmosphärischen Extingenten: Luftmoleküle, Aerosolpartikel und Wolkentropfen. In Kapitel 3 werden die verschiedenen Verfahren zur Lösung der Strahlungstransportgleichung in den verwendeten Strahlungstransportmodellen beschrieben. Kapitel 4 beschreibt die zur Berechnung

der aktinischen Strahlung in der Troposphäre entwickelte Modellhierarchie.

In den drei folgenden Kapiteln werden Anwendungen des 1-dimensionalen Strahlungstransportmodells diskutiert. Kapitel 5 enthält zahlreiche Sensitivitätsstudien, welche die Auswirkungen der einzelnen Extingenten auf den aktinischen Fluss und die Photodissoziationsfrequenzen deutlich machen. In Kapitel 6 wird das Strahlungstransportmodell durch Vergleiche mit anderen Modellrechnungen und Messungen evaluiert. Es wird gezeigt, dass die Ergebnisse der entwickelten Modellhierarchie sehr gut mit den aus anderen Strahlungstransportmodellen resultierenden und gemessenen Strahlungsgrößen sowohl in aerosolbelasteter als auch in bewölkter Atmosphäre übereinstimmen. In Kapitel 7 werden in einer Anwendung die aus der Modellhierarchie resultierenden Strahlungsgrößen Messungen des aktinischen Flusses am Boden gegenübergestellt.

Die beiden Kapitel 8 und 9 enthalten Anwendungen des 3-dimensionalen Strahlungstransportmodells SHDOM. In Kapitel 8 werden die Effekte partieller Bewölkung auf das Strahlungsfeld diskutiert. Dazu konnten quantitative Vergleiche mit Messungen des aktinischen Flusses am Boden durchgeführt werden. Kapitel 9 enthält einen quantitativen Vergleich von gemessenen und simulierten Vertikalprofilen der Photodissoziationsfrequenz von NO_2 , welche innerhalb einer Lücke einer ansonsten geschlossenen Wolkendecke aufgezeichnet wurden.

Nach der Zusammenfassung in Kapitel 10 folgt das abschließende Kapitel 11, welches einen Ausblick auf noch offene Fragestellungen und Verbesserungs- und Erweiterungsmöglichkeiten für Strahlungstransportmodelle enthält.

Kapitel 1

Der Strahlungstransport in der Atmosphäre

Die elektromagnetische Strahlung der Sonne steht in permanenter Wechselwirkung mit den Extingenten der terrestrischen Atmosphäre. Die Absorption, Streuung und Emission von Strahlung in der Atmosphäre und am Erdboden bestimmen die Temperatur der Atmosphäre und damit auch die dynamischen, thermischen und photochemischen Prozesse, welche in der Atmosphäre stattfinden. Die Bestimmung des atmosphärischen Strahlungstransports ist deshalb eine grundlegende Voraussetzung zur Simulation des Zustands der Atmosphäre.

Der Strahlungstransport beschreibt die Wechselwirkung zwischen der Atmosphäre mit der Erdoberfläche als unterer Randbedingung und dem elektromagnetischen Spektrum der Sonne. Zur Beschreibung des atmosphärischen Strahlungsfeldes wird die spektrale Strahldichte L , in $\text{W m}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}$, eingeführt:

$$L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = \frac{d\phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t)}{dt d\Omega d\nu dA}. \quad (1.1)$$

L beschreibt den Photonen- bzw. Energiefluss $d\phi$ pro Zeitintervall dt , Raumwinkel-element $d\Omega$, Frequenzintervall $d\nu$ und Flächenelement dA . Das Flächenelement dA ist senkrecht zur gegebenen Raumrichtung $\vec{\Omega}$ am Ort \vec{r} .

Abb. 1.1 verdeutlicht die Definition der Strahldichte L . Anstatt der Frequenz ν wird häufig auch die Wellenlänge λ verwendet. Der Zusammenhang zwischen der Frequenz ν und der Wellenlänge λ ist über

$$\lambda = \frac{c}{\nu} \quad (1.2)$$

gegeben, wobei c die Lichtgeschwindigkeit ist.

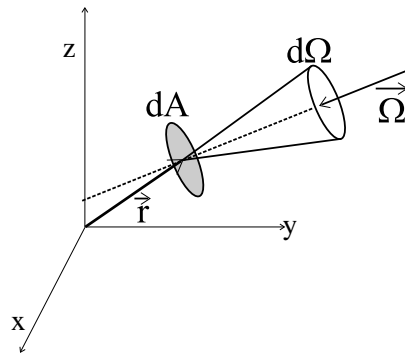
Abbildung 1.1: Skizze zur Definition der Strahldichte L .

Abb. 1.2 zeigt die normierte solare Einstrahlung am Oberrand der Atmosphäre (durchgezogene Linie) in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ . Sie basiert auf dem Planckschen Strahlungsgesetz bei einer Näherung für die Sonnentemperatur von 5800 K. Da die Sonne Strahlung in alle Raumrichtungen emittiert, trifft nur ein kleiner Anteil dieser Strahlung die Erde. Dieser Anteil ist durch die Entfernung der Erde zur Sonne bestimmt. Die solare Strahlung am Oberrand der Atmosphäre ist somit keine Planck-Kurve und schneidet die Planck-Kurve der terrestrischen Ausstrahlung (gepunktete Linie) bei einer Wellenlänge von $4.2 \mu\text{m}$. Diese resultiert aus dem Planckschen Strahlungsgesetz bei einer mittleren Temperatur der Erde von 288 K. Zur Vergleichbarkeit der Magnitude beider Größen wurde die terrestrische Ausstrahlung mit dem Normierungsfaktor der solaren Einstrahlung skaliert.

Die unterschiedlichen Oberflächentemperaturen dieser beiden Quellen führen zu zwei deutlich voneinander getrennten Bereichen: die kurzwellige Strahlung mit Wellenlängen kleiner $4.2 \mu\text{m}$, deren Quelle die Sonne ist, und die langwellige Strahlung mit Wellenlängen größer $4.2 \mu\text{m}$ mit terrestrischem oder atmosphärischem Ursprung. Die solare Energie integriert über die Wellenlängen $\lambda > 4.2 \mu\text{m}$ beträgt weniger als 0.6% der gesamten solaren Energie. Sie kann deshalb vernachlässigt werden. Entsprechendes gilt für die terrestrische Energie integriert über die Wellenlängen $\lambda < 4.2 \mu\text{m}$. Ihr Anteil an der gesamten terrestrischen Energie ist kleiner als 0.4% und wird aus diesem Grund ebenfalls vernachlässigt. In Abb. 1.2 wird deutlich, dass die spektrale Energie pro Wellenlängenintervall im kurzwelligen Spektralbereich we-

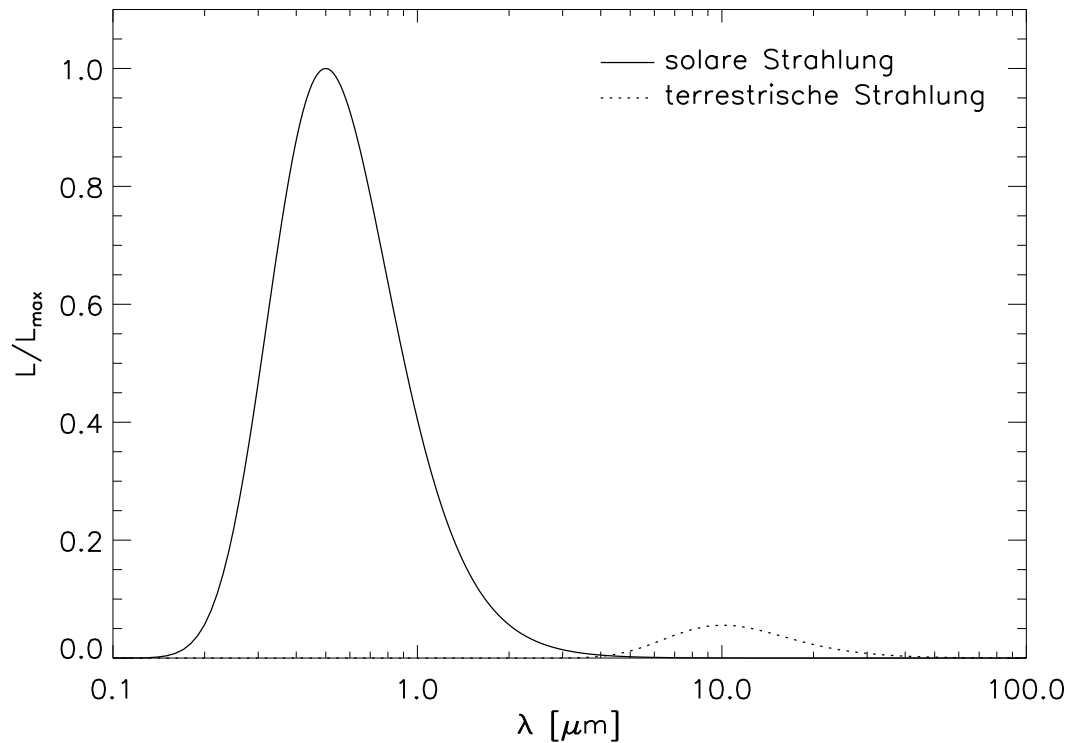


Abbildung 1.2: Normierte Strahldichte der solaren Strahlung am Oberrand der Atmosphäre in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ für eine Sonnentemperatur von 5800 K. Die Strahldichte der terrestrischen Strahlung bei einer mittleren Temperatur der Erde von 288 K wurde mit dem Normierungsfaktor der solaren Strahldichte skaliert.

sentlich höher ist als im langwelligen.

Der Spektralbereich der solaren Strahlung lässt sich weiter in den ultravioletten Spektralbereich mit Wellenlängen kleiner etwa 400 nm, den sichtbaren Spektralbereich zwischen 400 und 780 nm und den infraroten Spektralbereich mit Wellenlängen größer 780 nm unterteilen.

Analytisch wird der Strahlungstransport in der Atmosphäre von der Strahlungstransportgleichung beschrieben. Eine Quelle in dieser Gleichung ist die solare Einstrahlung am Oberrand der Atmosphäre und deren Verminderung in der hohen Atmosphäre und Stratosphäre, welche in Abschnitt 1.1 beschrieben wird. Weitere Quellen und Senken sind die in der Troposphäre stattfindende Absorption durch Ozon und Stickstoffdioxid und die Streuung an atmosphärischen Luftmolekülen und Partikeln. Diese Prozesse werden in den Abschnitten 1.2 und 1.3 behandelt. Abschnitt 1.4 beinhaltet die Herleitung der Strahlungstransportgleichung.

1.1 Die solare Einstrahlung

Die Energie der Sonne ist die treibende Kraft atmosphärischer Bewegungen und die Ursache photochemischer Reaktionen in der Erdatmosphäre. Der größte Teil der solaren Energie, welche die Erdatmosphäre erreicht, stammt aus der Photosphäre der Sonne. Diese Schicht beschreibt das sichtbare Volumen der Sonne. Die Temperatur dieser Schicht beträgt etwa 5800 K. Unter der Annahme eines idealen Schwarzkörpers strahlt die Sonne unpolarisierte elektromagnetische Wellen entsprechend dem Planckschen Strahlungsgesetz aus. Verändert wird dieses von der Sonne emittierte Kontinuum jedoch durch selektive Absorption und Reemission der Strahlung in der oberen Photosphäre, wo die Temperatur auf etwa 4000 bis 5000 K abgesunken ist. Die dadurch entstandenen Absorptionslinien im Sonnenspektrum heißen Fraunhofer-Linien.

Der solare Strahlungsfluss, welcher am Oberrand der Erdatmosphäre ankommt, wird als extraterrestrischer Fluss S_0 bezeichnet. Wie bereits in Abb. 1.2 dargestellt, reicht das solare Spektrum von wenigen Nanometern bis etwa $5 \mu\text{m}$ Wellenlänge.

In der hohen Atmosphäre und Stratosphäre wird die solare Strahlung durch dort vorhandene Atome und Moleküle teilweise absorbiert. Für Wellenlängen kleiner 100 nm wird die Strahlung bereits oberhalb von 100 km Höhe von atomarem Sauerstoff und molekularem Stickstoff nahezu vollständig absorbiert. Auch Strahlung mit Wellenlängen kleiner 202 nm kann nur bis in eine Höhe von etwa 50 km in die Atmosphäre eindringen. Oberhalb davon wird sie vollständig von molekularem Sauerstoff absorbiert. Im Spektralbereich bis etwa 300 nm findet eine starke Absorption durch Ozon in der Stratosphäre statt, so dass die solare Strahlung mit Wellenlängen kleiner 300 nm nicht in die Troposphäre eindringen kann (*Brasseur und Solomon*, 1986). Zur Untersuchung des Strahlungstransports in der Troposphäre ist die Betrachtung der Strahlung mit Wellenlängen größer als 290 nm bis 300 nm ausreichend.

In Abb. 1.3 ist der extraterrestrische Fluss S_0 am Oberrand der Atmosphäre im Spektralbereich zwischen 290 nm und 852.5 nm nach *Woods et al.* (1996) (bis 400 nm) und dem *WMO-Report* (1986) dargestellt.

Der extraterrestrische Fluss ist zeitlich nicht konstant. Zum einen variiert der Abstand der Erde zur Sonne mit der Jahreszeit auf Grund der Exzentrizität der Erdbahn. Der Faktor, mit welchem S_0 dafür korrigiert werden muss schwankt zwischen 0.97 am 7. Juni und 1.03 am 5. Januar. Zum anderen variiert auch die solare Ausstrahlung. Eine täglich Variation ist mit der Rotation der Sonne um ihre Achse

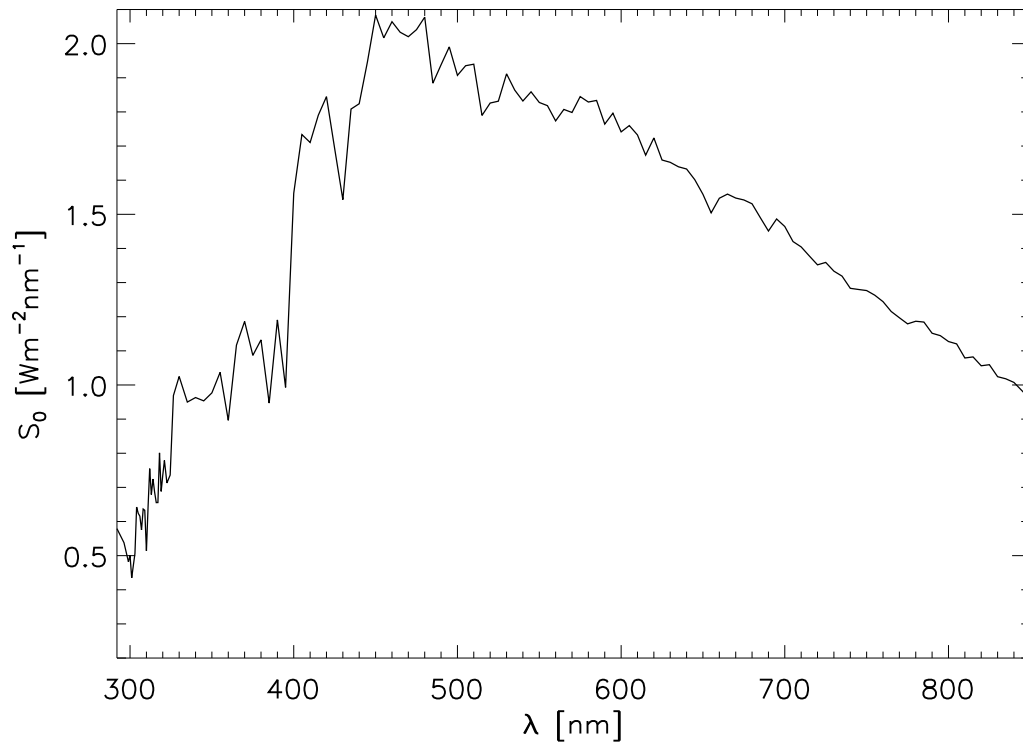


Abbildung 1.3: S_0 in Abhängigkeit von λ ($290 \text{ nm} < \lambda < 400 \text{ nm}$: SUSIM / Atlas-2-Spektrum aus *Woods et al.* (1996); $400 \text{ nm} < \lambda < 852.5 \text{ nm}$: Spektrum aus *WMO-Report* (1986)).

verknüpft. Eine Umdrehung der Sonne dauert 27 Tage. Diese Variation wird überlagert vom 11-Jahres-Zyklus der magnetischen Sonnenaktivität. Bei Wellenlängen zwischen $\lambda = 100 \text{ nm}$ und $\lambda = 200 \text{ nm}$ erreicht die Variation des extraterrestrischen Flusses 100% bis 50% (*Meier et al.*, 1997). Im nahen ultravioletten, sichtbaren und infraroten Spektralbereich beträgt die Veränderung des extraterrestrischen Flusses nur wenige zehntel Prozent und ist daher vernachlässigbar.

Da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der Untersuchung der aktinischen Strahlung in der Troposphäre liegt, ist lediglich der in Abb. 1.3 dargestellte Wellenlängenbereich relevant. Strahlung mit Wellenlängen $\lambda < 290 \text{ nm}$ dringt nicht bis in die Troposphäre ein und muss daher zur Bestimmung der aktinischen Strahlung in der Troposphäre nicht berücksichtigt werden. Die Energie der Strahlung mit Wellenlängen $\lambda > 850 \text{ nm}$ ist nicht ausreichend zur Aufspaltung atmosphärischer Moleküle und ist aus diesem Grund nicht für die Bestimmung der aktinischen Strahlung relevant.

1.2 Absorption in der Troposphäre

Absorbiert ein Elektron eines Moleküles durch Wechselwirkung mit einem Photon Energie, so wechselt das Elektron in ein höheres Energieniveau. Das Molekül geht damit in einen angeregten Zustand über. Bei der anschließenden Emission wechselt das Elektron unter Freigabe eines oder mehrerer Photonen wieder auf ein niedrigeres Energieniveau zurück. Jeder Wechsel des festen Energieniveaus führt zur Emission oder Absorption von Strahlung mit einer charakteristischen Wellenlänge, was zu den typischen Absorptions- bzw. Emissionslinien führt. Bei der Absorption durch Moleküle liegen viele solcher charakteristischer Wellenlängen sehr dicht beieinander und führen somit zu den sogenannten Absorptionsbanden.

Die Größe, welche die spektralen Absorptionseigenschaften unterschiedlicher Moleküle beschreibt, ist der Absorptionsquerschnitt. Die Absorptionsspektren von Ozon und Stickstoffdioxid, welche zur Bestimmung der Ozonabsorption und der Photodissoziationsfrequenzen (siehe Abschnitt 4.2) verwendet werden, sollen hier vorgestellt werden.

Abb. 1.4 zeigt den Absorptionsquerschnitt von Ozon σ_{O_3} nach *Daumont et al.* (1992) in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ . Die unterschiedlichen Linien beschreiben die Temperaturabhängigkeit des σ_{O_3} . Der Absorptionsquerschnitt von Ozon σ_{O_3} bei $T = 218 \text{ K}$ ist durch die durchgezogene Linie, σ_{O_3} bei $T = 228 \text{ K}$ durch die gepunktete Linie, σ_{O_3} bei $T = 243 \text{ K}$ durch die gestrichelte Linie, σ_{O_3} bei $T = 273 \text{ K}$ durch die strich-punktierte Linie und σ_{O_3} bei $T = 295 \text{ K}$ durch die strich-dreifach-punktierte Linie gekennzeichnet. Der größte Absorptionsquerschnitt innerhalb des dargestellten Intervalls von $1.1 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ liegt bei 292 nm . Bei 330 nm ist σ_{O_3} mehr als zwei Größenordnungen geringer. Der für die Ozonabsorption relevante Bereich liegt also bei den kurzen Wellenlängen. Daher ist der Bereich von $\lambda = 292 \text{ nm}$ bis 360 nm (links) in Abb. 1.4 feiner aufgelöst als der Bereich von $\lambda = 420 \text{ nm}$ bis 850 nm (rechts).

Im Wellenlängenbereich zwischen 242 nm und 310 nm wird die Absorptionsbande von Ozon als Hartley-Bande bezeichnet. Im Anschluss daran befindet sich die Huggins-Bande bis zu einer Wellenlänge von 400 nm . Die Absorptionsbande im sichtbaren Bereich zwischen 400 nm und 850 nm ist die Chappuis-Bande (*Brasseur und Solomon*, 1986).

In Abb. 1.5 ist der Absorptionsquerschnitt von Stickstoffdioxid σ_{NO_2} in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ nach *Mérienne et al.* (1995) dargestellt. Auch σ_{NO_2} ist von

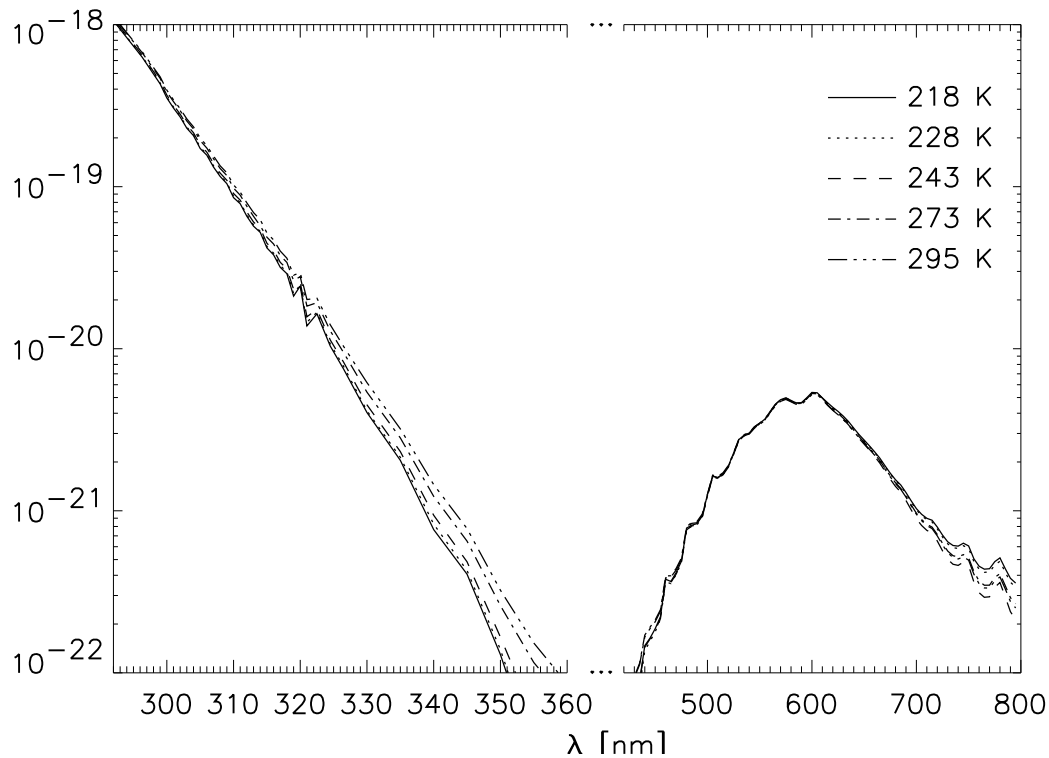


Abbildung 1.4: σ_{O_3} in Abhängigkeit von λ bei $T = 218\text{ K}$, $T = 228\text{ K}$, $T = 243\text{ K}$, $T = 273\text{ K}$ und $T = 295\text{ K}$ nach *Daumont et al.* (1992).

der Temperatur abhängig. Die durchgezogene Linie beschreibt σ_{NO_2} bei $T = 220\text{ K}$ und die gepunktete Linie σ_{NO_2} bei $T = 293\text{ K}$. Die Temperaturabhängigkeit von σ_{NO_2} ist jedoch nur bei $\lambda < 400\text{ nm}$ von Bedeutung. Die Größenordnung des NO_2 -Absorptionsquerschnittes im dargestellten Wellenlängenbereich zwischen 292 nm bis 500 nm entspricht etwa der Größenordnung des O_3 -Absorptionsquerschnittes im Wellenlängenbereich zwischen 297 nm bis 309 nm . Das Maximum der NO_2 -Absorption befindet sich bei 400 nm .

1.3 Streuung in der Troposphäre

Die Interaktion einer elektromagnetischen Welle mit einem isolierten Streukörper kann unter Verwendung der Maxwell-Gleichungen analytisch exakt formuliert werden, sofern die Streukörper sphärisch sind.

Als Streukörper in der Atmosphäre dienen sowohl die Luftmoleküle, als auch Aerosolpartikel und Wolken- bzw. Regentropfen, aber auch Eisteilchen. Die Annahme

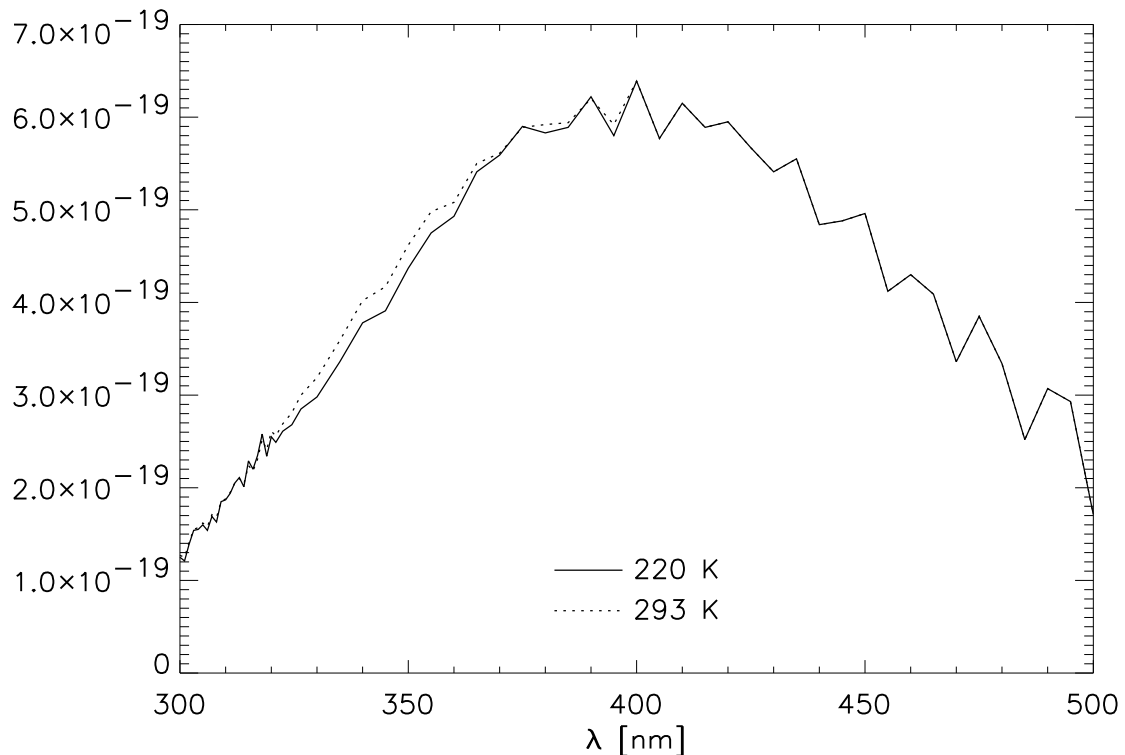


Abbildung 1.5: σ_{NO_2} in Abhängigkeit von λ bei $T = 220 \text{ K}$ und $T = 293 \text{ K}$ nach *Mérienne et al.* (1995).

sphärischer Streukörper ist deshalb für die Atmosphäre nur bedingt zutreffend. Wegen der geringen Größe der Luftmoleküle im Vergleich zur Wellenlänge der einfallenden Strahlung ist die Annahme von kugelförmigen Molekülen zulässig. Aerosolpartikel sind i.A. nicht kugelförmig. Zur Bestimmung der Streueigenschaften der Aerosolpartikel nimmt man näherungsweise an, dass sie kugelförmig seien. Diese Annahme ist für die Berechnung von Strahlungsflüssen zulässig, da sich durch die Integration über die Raumwinkel die unterschiedlichen Streueigenschaften der sphärischen und nicht-sphärischen Partikel nahezu aufheben (*Mishchenko et al.*, 1995). Bei der Berechnung von winkelabhängigen Strahlungsparametern führt diese Annahme jedoch zu beträchtlichen Fehlern (*Mishchenko et al.*, 1995). Zur Beschreibung der Partikelgröße verwendet man den Äquivalentradius. Der Äquivalentradius ist der Radius, den die Aerosolpartikel annehmen würden, wenn ihr aktuelles Volumen auf exakte Kugelform gebracht würde. Die im Weiteren verwendete Bezeichnung „Radius der Aerosolpartikel“ bezieht sich deshalb immer auf den Äquivalentradius. Wolkentropfen sind im Gegensatz zu Regentropfen oder Eisteilchen in guter Nähe-

rung kugelförmig. Der Einfluss von Regentropfen und Eisteilchen auf die aktinische Strahlung ist jedoch nicht Gegenstand dieser Arbeit und wird deshalb nicht weiter diskutiert.

Mit diesen Einschränkungen reduziert sich das Problem auf kugelförmige Streukörper. Somit entfällt die Abhängigkeit von Form und Orientierung. Die resultierenden optischen Parameter sind damit lediglich von der Partikelgröße und deren chemischer Zusammensetzung abhängig.

Die beschriebene Kombination an Streukörpern impliziert, dass sich deren Größe über 6 Größenbereiche erstreckt: von etwa 10^{-10} m Radius der Moleküle bis zu einem Radius von etwa 10^{-4} m der Wolkentropfen.

Trifft eine elektromagnetische Welle auf ein isoliertes Teilchen, so wird die Wellenfront gestört, da sich die magnetischen und elektrischen Eigenschaften eines Streukörpers von denen der Umgebung unterscheiden und dadurch die Homogenität des Mediums stören. Die Folgen dieser Störung sind zum einen die Verringerung der Wellenamplitude und zum anderen die Entstehung einer zusätzlichen, sich vom Partikel entfernenden Kugelwelle, deren Ausgangspunkt der Streukörper darstellt. Die Energie dieser zusätzlichen Welle ist die gestreute Energie. Die gesamte Energieabnahme der ebenen Welle entspricht der Extinktion. Die Differenz der beiden ist die Absorption.

Bei dieser Methode wird lediglich die elastische Streuung berücksichtigt. Dabei verändert sich die Wellenlänge der gestreuten Strahlung nicht. Außer der elastischen Streuung existiert auch die unelastische Streuung. Diese hat eine Frequenzverschiebung zur einfallenden Strahlung zur Folge und wird als Raman-Streuung bezeichnet. Da die unelastische Streuung um mehrere Größenordnungen geringer ist als die elastische Streuung (*Lenoble*, 1993), wird sie bei diesen Betrachtungen vernachlässigt. Eine weitere Vereinfachung beruht auf der Annahme, dass die Streukörper hinreichend weit auseinanderliegen, so dass die vom Streuzentrum ausgehende Kugelwelle im Fernfeld wieder als ebene Welle behandelt werden kann.

Somit reduziert sich dieses Problem auf die Streuung einer monochromatischen, ebenen elektromagnetischen Welle an einem sphärischen Teilchen, für welches die Mie-Theorie eine vollständige Lösung zur Verfügung stellt.

1.3.1 Mie-Streuung

Für Partikel, die größer als die Wellenlänge der einfallenden Strahlung sind, erhält man deren Streueigenschaften durch Lösen einer Randwertaufgabe für das magnetische und elektrische Feld mit Hilfe der Maxwell-Gleichungen. Die notwendigen Randbedingungen ergeben sich aus der Eigenschaft, dass die Tangentialkomponenten des elektrischen und magnetischen Feldvektors \vec{E} bzw. \vec{H} beim Durchgang durch die Grenzfläche zweier Medien stetig sind (*Jackson*, 1983):

$$\begin{aligned}\vec{n} \times (\vec{E}_2 - \vec{E}_1) &= \vec{0} \\ \vec{n} \times (\vec{H}_2 - \vec{H}_1) &= \vec{0}.\end{aligned}\tag{1.3}$$

Für den hier zu betrachtenden Fall isotroper Medien sollen auch die Normalkomponenten der beiden Feldvektoren beim Übergang von einem zum anderen Medium stetig sein:

$$\begin{aligned}\vec{n} \cdot (\varepsilon_2 \vec{E}_2 - \varepsilon_1 \vec{E}_1) &= 0 \\ \vec{n} \cdot (\mu_2 \vec{H}_2 - \mu_1 \vec{H}_1) &= 0.\end{aligned}\tag{1.4}$$

Die beiden durch die magnetische Permeabilität μ_1 bzw. μ_2 und die Dielektrizitätskonstante ε_1 bzw. ε_2 beschriebenen Medien stehen für den Streukörper bzw. den umgebenden Raum. Die Grenzfläche der beiden Medien ist entsprechend die Kugeloberfläche des Streukörpers. Die magnetische Permeabilität und die Dielektrizitätskonstante definieren den Brechungsindex n_i des jeweiligen Mediums:

$$n_i = \sqrt{\mu_i \varepsilon_i}.\tag{1.5}$$

Eine Multipolentwicklung führt zur Lösung dieses Randwertproblems und zur Bestimmung des spektralen Extinktionsquerschnitts σ_{ext} :

$$\sigma_{\text{ext}}(x, n) = \pi r^2 Q_{\text{ext}}(x, n) = \frac{2\pi r^2}{x^2} \sum_{i=1}^{\infty} (2i+1) \mathcal{R}e \left(|a_i|^2 + |b_i|^2 \right)\tag{1.6}$$

und des Streuquerschnitts σ_{sca} :

$$\sigma_{\text{sca}}(x, n) = \pi r^2 Q_{\text{sca}}(x, n) = \frac{2\pi r^2}{x^2} \sum_{i=1}^{\infty} (2i+1) \left(|a_i|^2 + |b_i|^2 \right).\tag{1.7}$$

Dabei ist

$$x = 2\pi r/\lambda\tag{1.8}$$

der Mie-Größenparameter, welcher über das Verhältnis zwischen dem Radius des Streukörpers r und der Wellenlänge λ definiert ist. Die Effizienzfaktoren der Extinktion und Streuung $Q_{\text{ext}}(x, n)$ in Gl. (1.6) und $Q_{\text{sca}}(x, n)$ in Gl. (1.7) sind dimensionslose Größen. Die Koeffizienten a_i und b_i lauten:

$$\begin{aligned} a_i(x, n) &= \frac{n\psi_i(nx)\psi'_i(x) - \psi_i(x)\psi'_i(nx)}{n\psi_i(nx)\xi'_i(x) - \xi_i(x)\psi'_i(nx)} \\ b_i(x, n) &= \frac{\psi_i(nx)\psi'_i(x) - n\psi_i(x)\psi'_i(nx)}{\psi_i(nx)\xi'_i(x) - n\xi_i(x)\psi'_i(nx)}. \end{aligned} \quad (1.9)$$

Für eine detaillierte Ableitung des Mieschen Streuproblems wird auf *Bohren und Huffman* (1983) verwiesen. Der Brechungsindex des Streukörpers n_p und der umgebenden Luft n_0 gehen als Quotient n ein:

$$n = n_p/n_0. \quad (1.10)$$

Die Funktionen ψ_i und ξ_i sind die Ricatti-Bessel-Funktionen. Die gestrichenen Funktionen entsprechen den Ableitungen nach dem Argument.

Die Beschreibung der Winkelverteilung der zusätzlich am Streukörper entstandenen Welle erfolgt durch die Phasenfunktion \mathcal{P} . Sie beschreibt den Anteil der Strahlung pro Einheit einfallender Strahlung aus Richtung $\vec{\Omega}'$, welche in den Raumwinkel $\vec{\Omega}$ gestreut wird. Für kugelförmige Streukörper ist \mathcal{P} lediglich vom Streuwinkel Θ abhängig. Der Streuwinkel Θ ist der Winkel zwischen $\vec{\Omega}$ und $\vec{\Omega}'$ mit den Zenit- und Azimutkomponenten ϑ bzw. ϑ' und φ bzw. φ' . Für den Kosinus des Streuwinkels gilt:

$$\cos \Theta = \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}' = \cos \vartheta \cos \vartheta' + \sqrt{1 - \cos^2 \vartheta} \sqrt{1 - \cos^2 \vartheta'} \cos(\varphi - \varphi'). \quad (1.11)$$

Für den Kosinus des Zenitwinkels schreibt man abkürzend auch $\cos \vartheta = \mu$.

Die Phasenfunktion ist normiert, so dass gilt:

$$\oint_{4\pi} \mathcal{P}(\cos \Theta) d\Omega = 4\pi. \quad (1.12)$$

Sie kann bestimmt werden über (*Lenoble*, 1993):

$$\mathcal{P}(\cos \Theta) = \frac{\lambda^2}{2\pi \sigma_{\text{sca}}(x, n)} (|S_1|^2 + |S_2|^2). \quad (1.13)$$

Die Streuamplituden S_1 und S_2 lauten:

$$\begin{aligned} S_1 &= \sum_{i=1}^{\infty} \frac{2i+1}{i(i+1)} (a_i \pi_i + b_i \tau_i) \\ S_2 &= \sum_{i=1}^{\infty} \frac{2i+1}{i(i+1)} (a_i \tau_i + b_i \pi_i) \end{aligned} \quad (1.14)$$

mit

$$\pi_i(\cos \Theta) = \frac{P_i^1(\cos \Theta)}{\sin \Theta} \quad \tau_i(\cos \Theta) = \frac{dP_i^1(\cos \Theta)}{d \cos \Theta} \quad (1.15)$$

und den Koeffizienten a_i und b_i aus Gl. (1.9). Die P_i^1 sind die zugeordneten Legendre-Funktionen.

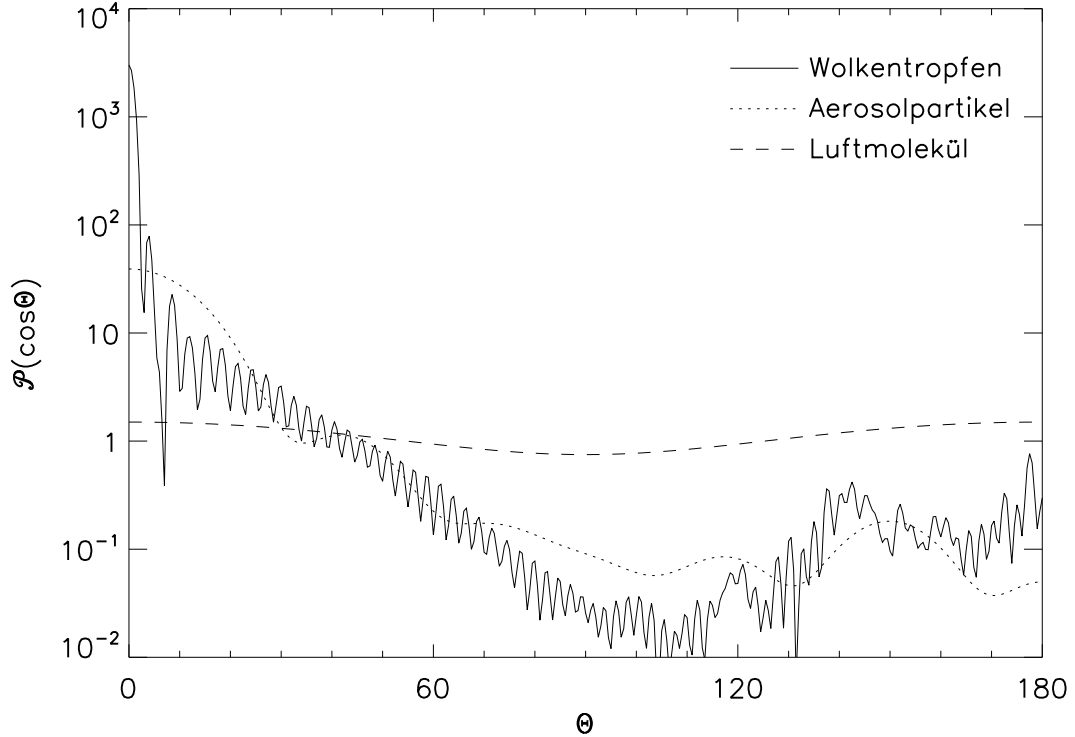


Abbildung 1.6: $\mathcal{P}(\cos \Theta)$ in Abhängigkeit von Θ bei $\lambda = 500 \text{ nm}$ für einen Wolkentropfen mit $6 \mu\text{m}$ Radius, für einen Aerosolpartikel mit $0.5 \mu\text{m}$ Radius und für ein Luftmolekül mit $10^{-4} \mu\text{m}$ Radius.

In Abb. 1.6 ist die Phasenfunktion $\mathcal{P}(\cos \Theta)$, entsprechend Gl. (1.13), in Abhängigkeit vom Streuwinkel Θ für die Wellenlänge $\lambda = 500 \text{ nm}$ dargestellt. Die Berechnungen wurden für 361 Streuwinkel Θ durchgeführt, was einem $\Delta\Theta$ von 0.5° entspricht. Die durchgezogene Linie beschreibt $\mathcal{P}(\cos \Theta)$ eines sphärischen Streukörpers mit $6 \mu\text{m}$ Radius und dem Brechungsindex von Wasser. Die gepunktete Linie bezieht sich auf $\mathcal{P}(\cos \Theta)$ einer Kugel mit $0.5 \mu\text{m}$ Radius und dem Brechungsindex von urbanem Aerosol. Die gestrichelte Linie beschreibt die für ein Luftmolekül mit einem Radius von $10^{-4} \mu\text{m}$ charakteristische Phasenfunktion.

In Abb. 1.6 wird deutlich, dass mit zunehmendem Partikelradius der in die Vorwärtsrichtung (0°) gestreute Anteil der Strahlung größer wird. Die Schwankungen der Phasenfunktion nehmen mit zunehmender Partikelgröße zu. Bestimmt man jedoch die Phasenfunktion gemittelt über eine Größenverteilung dieser Partikel, so werden die Schwankungen abgeschwächt, da relative Maxima der Phasenfunktion relative Minima auslöschen.

Wegen des hohen Rechenaufwandes zur Bestimmung der winkelabhängigen Phasenfunktion, wird diese häufig mit Hilfe des Asymmetrieparameters g_p approximiert. Dieser ist der mittlere Kosinus des Streuwinkels Θ und definiert über (*Bohren und Huffman, 1983*):

$$g_p(x, n) = \langle \cos \Theta \rangle = \frac{1}{4\pi} \oint_{4\pi} \mathcal{P}(\cos \Theta) \cos \Theta d\Omega, \quad (1.16)$$

wobei $|g_p(x, n)| \leq 1$. Die Verwendung eines mittleren Wertes für die Streufunktion stellt für die Bestimmung von Strahlungsflüssen, welche sich aus der Integration über die Raumwinkel ergeben, eine gute Approximation dar. Zur Berechnung der winkelabhängigen Strahldichte, wie sie zur Fernerkundung mittels Satellitenbeobachtungen benötigt wird, ist diese Näherung jedoch nicht mehr geeignet.

Für isotrop (d.h. in alle Richtungen gleich) streuende Partikel verschwindet der Asymmetrieparameter, ebenso für symmetrische Streuung um den Streuwinkel von 90° . Streut das Partikel mehr Licht in den Halbraum der Vorwärtsrichtung (Streuwinkel von 0° bis 90°) so ist der Asymmetrieparameter positiv. Andernfalls, bei einem Streuwinkel zwischen 90° und 180° , negativ.

1.3.2 Rayleigh-Streuung

Die Streuung an kleinen Teilchen, welche um Größenordnungen kleiner sind als die Wellenlänge der einfallenden Strahlung, kann mit einem Spezialfall der Mie-Theorie, der Rayleigh-Theorie beschrieben werden. Bei der Rayleigh-Streuung ist der Betrag der gestreuten Strahlung in den Halbraum der Vorwärts- und Rückwärtsrichtung gleich und erreicht bei diesen Winkeln sein Maximum. Sein Minimum liegt bei 90° bzw. 270° (siehe gestrichelte Linie in Abb. 1.6).

Mit Hilfe einer empirischen Formel von *Nicolet (1984)* wird der molekulare Streuquerschnitt σ_{ray} , in cm^2 , für die Streuung an Luftmolekülen bestimmt:

$$\sigma_{\text{ray}} = \frac{4.02 \cdot 10^{-28}}{\lambda^{4+x_{\text{ray}}}}. \quad (1.17)$$

Für $\lambda \leq 550$ nm lautet der Parameter x_{ray} :

$$x_{\text{ray}} = 0.389\lambda + \frac{0.09426}{\lambda} - 0.3228, \quad (1.18)$$

wobei λ in μm anzugeben ist. Für $\lambda > 550$ nm ist $x_{\text{ray}} = 0.04$. Der Fehler dieser empirischen Formel ist geringer als $\pm 0.5\%$, was zu einer Genauigkeit bei der Bestimmung der optischen Dicken von $\pm 1\%$ (Nicolet, 1984) führt.

Der Gültigkeitsbereich von Gl. (1.17) umfasst die gesamte Homosphäre (Troposphäre, Stratosphäre und Mesosphäre).

Der Streuquerschnitt der Rayleigh-Streuung nimmt mit zunehmender Wellenlänge mit etwa der 4. Potenz der Wellenlänge ab. Das führt dazu, dass Strahlung im Bereich kürzerer Wellenlängen wesentlich stärker gestreut wird. Dadurch wird der diffuse Anteil der Strahlung in diesem Wellenlängenbereich erhöht. Das diffuse blaue Himmelslicht an klaren Tagen liegt darin begründet.

1.4 Die Herleitung der Strahlungstransportgleichung

Die Strahlungstransportgleichung ist eine Bilanzgleichung für die Strahlung, die das Volumenelement dV am Ort \vec{r} in Richtung $\vec{\Omega}$ durchläuft. Beim Durchgang durch dV findet eine Wechselwirkung in Form von Emission, Streuung und Absorption statt. Die Summe aus Streuung und Absorption ergibt die Extinktion, welche die Strahldichte L gemäß dem Beerschen Gesetz reduziert:

$$dL(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = -\beta_{\text{ext}}(n, \nu) L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) ds. \quad (1.19)$$

Der Extinktionskoeffizient $\beta_{\text{ext}}(n, \nu)$ in Gl. (1.19) ist definiert über:

$$\beta_{\text{ext}}(n, \nu) = \beta_{\text{sca}}(n, \nu) + \beta_{\text{abs}}(n, \nu). \quad (1.20)$$

Zusätzlich zur Schwächung der Strahldichte gemäß Gl. (1.19) existiert ein Quellterm $Q(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t)$, welcher zum einen die Temperaturstrahlung und zum anderen die Streustrahlung berücksichtigt. Dieser führt zu einem zusätzlichen Beitrag zur Änderung der Strahldichte im Volumenelement in folgender Form:

$$dL(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = \beta_{\text{ext}}(n, \nu) Q(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) ds, \quad (1.21)$$

bzw.

$$Q(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = \frac{1}{\beta_{\text{ext}}} \frac{dL}{ds}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t). \quad (1.22)$$

Das Wegelement ds kann auch geschrieben werden als

$$\frac{d}{ds} = \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla}. \quad (1.23)$$

Durch Zusammenfassen der Gl. (1.19) und Gl. (1.21) ergibt sich die gesamte Änderung der Strahldichte im Volumenelement:

$$\frac{1}{\beta_{\text{ext}}(n, \nu)} \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = -L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) + Q(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t). \quad (1.24)$$

Zur Spezifikation der Quellfunktion wird zunächst die *Temperaturstrahlung* am Ort \vec{r} in Richtung $\vec{\Omega}$ betrachtet. Die isotrope Schwarzkörperstrahlung nach dem Planckschen Strahlungsgesetz lautet:

$$B(T, \nu) = \frac{2 h \nu^3}{c^2 \left(\exp \left\{ \frac{h \nu}{k T} \right\} - 1 \right)} \quad (1.25)$$

mit der Planckschen Konstante h , der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum c , der Boltzmann-Konstante k und der Frequenz ν . B ist die isotrope Strahlungsintensität eines schwarzen Körpers bei der Temperatur T im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht des Volumenelements dV am Ort \vec{r} . Nach dem *Kirchhoffschen Strahlungsgesetz* gilt, dass das Verhältnis der emittierten Strahlung $\mathcal{E}(T, \nu)$ eines Körpers der Temperatur T zu seinem Absorptionsvermögen $a(\nu)$ dem Betrage nach gleich der Ausstrahlung eines schwarzen Körpers $B(T, \nu)$ bei der Temperatur T ist, d.h.

$$\frac{\mathcal{E}(T, \nu)}{a(\nu)} = B(T, \nu). \quad (1.26)$$

Hierbei beschreibt $a(\nu)$ das Verhältnis zwischen absorbierter und auftreffender Strahlung. Für einen idealen Schwarzkörper ist also $a(\nu) = 1$.

Die Transmission \mathcal{T} beschreibt den nicht extingierten Anteil der Strahlung

$$\mathcal{T} = \exp \left\{ - \int_0^s \beta_{\text{ext}} ds' \right\}. \quad (1.27)$$

Vernachlässigt man für die Temperaturstrahlung die Streuung, so wird die Extinktion lediglich noch von der Absorption bestimmt. Somit läßt sich $a(\nu)$ auch als Differenz zwischen 1 und \mathcal{T} ausdrücken, d.h.

$$a(\nu) = 1 - \mathcal{T} = 1 - \exp \left\{ - \int_0^s \beta_{\text{abs}} ds' \right\}. \quad (1.28)$$

Da ds eine infinitesimale Ausdehnungen beschreibt, gilt $\beta_{\text{abs}} ds \ll 1$. Daher kann der Ausdruck „ $\exp\{-\beta_{\text{abs}} ds\}$ “ in eine Taylor-Reihe entwickelt werden. Somit folgt:

$$a(\nu) = \beta_{\text{abs}} ds. \quad (1.29)$$

Die emittierte Strahlung \mathcal{E} liefert den Beitrag dL zum Strahlungsfeld mit

$$\frac{dL}{ds} = \beta_{\text{abs}} B(T, \nu). \quad (1.30)$$

Aus Gl. (1.30) und Gl. (1.22) ergibt sich für den Teil der Quellfunktion, der die Temperaturstrahlung beschreibt:

$$Q^{\text{I}} = \frac{1}{\beta_{\text{ext}}} \frac{dL}{ds} = \frac{\beta_{\text{abs}}}{\beta_{\text{ext}}} B(T, \nu). \quad (1.31)$$

Nun führt man die *Einfachstreuabedo* $\tilde{\omega}$ ein:

$$\tilde{\omega} = \frac{\beta_{\text{sca}}}{\beta_{\text{ext}}}, \quad 0 \leq \tilde{\omega} \leq 1. \quad (1.32)$$

Die Einfachstreuabedo beschreibt den Anteil der Streuung an der gesamten Extinktion. Enthält die Extinktion keine Beiträge aus Absorption, also $\tilde{\omega} = 1$, so handelt es sich um konservative Streuung, andernfalls, $\tilde{\omega} < 1$, um nicht-konservative Streuung.

Gl. (1.31) zusammen mit Gl. (1.32) führt zu:

$$Q^{\text{I}} = (1 - \tilde{\omega}) B(T, \nu). \quad (1.33)$$

Eine weitere Quelle der Strahldichte ist die *diffuse Strahlung*, welche die gestreute Strahlung beinhaltet. Abb. 1.7 skizziert die aus den Richtungen $\vec{\Omega}'$ einfallende Strahlung, welche im Volumenelement dV am Ort \vec{r} in Richtung $\vec{\Omega}$ gestreut wird. D.h. aus allen Raumrichtungen $\vec{\Omega}'$ wird in das Volumenelement dV eingestrahlt. Ein Teil dieser Strahlung wird in Richtung $\vec{\Omega}$ gestreut. Der Anteil der Strahlung, welcher aus der Richtung $\vec{\Omega}'$ in Richtung $\vec{\Omega}$ gestreut wird, wird von der Phasenfunktion $\mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}', \nu, t)$ beschrieben. Die in die Richtung $\vec{\Omega}$ gestreute Strahlung erhöht die Strahldichte in folgender Form:

$$dL(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = \frac{\beta_{\text{sca}}}{4\pi} \oint_{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}', \nu, t) L(\vec{r}, \vec{\Omega}', \nu, t) d\Omega' ds. \quad (1.34)$$

Gl. (1.34) zusammen mit Gl. (1.22) beschreiben den zweiten Anteil der Quellfunktion:

$$Q^{\text{II}} = \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \oint_{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}', \nu, t) L(\vec{r}, \vec{\Omega}', \nu, t) d\Omega'. \quad (1.35)$$

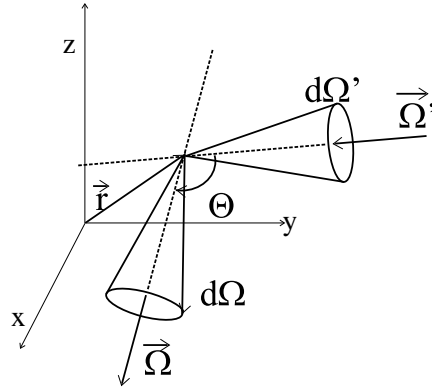


Abbildung 1.7: Graphische Darstellung der in das Volumenelement dV am Ort \vec{r} einfallenden Strahlung aus dem Winkel $\vec{\Omega}'$, die in Richtung $\vec{\Omega}$ gestreut wird.

Die beiden Funktionen Q^I aus Gl. (1.33) und Q^{II} aus Gl. (1.35) addieren sich zur Quelle der Strahldichte Q in Gl. (1.24). Für die Strahlungstransportgleichung folgt damit:

$$\frac{1}{\beta_{\text{ext}}} \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = -L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) + (1 - \tilde{\omega}) B(T, \nu) + \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \oint_{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}', \nu, t) L(\vec{r}, \vec{\Omega}', \nu, t) d\Omega'. \quad (1.36)$$

Gl. (1.36) beschreibt die Wechselwirkung des gesamten Strahlungsfeldes mit den atmosphärischen Extingenten. Ist man jedoch nur an einer Gleichung für die diffuse Strahlung interessiert, so muss die Strahldichte in ihren direkten L^{dir} und diffusen L^{diff} Anteil aufgespalten werden:

$$L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = L^{\text{dir}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) + L^{\text{diff}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t). \quad (1.37)$$

Nach dem Beerschen Gesetz gilt für die direkte Solarstrahlung:

$$dL^{\text{dir}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = -\beta_{\text{ext}} L^{\text{dir}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) ds \quad (1.38)$$

bzw.

$$\vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} L^{\text{dir}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = -\beta_{\text{ext}} L^{\text{dir}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t). \quad (1.39)$$

Die Lösung dieser linearen, homogenen Differentialgleichung 1. Ordnung lautet:

$$L^{\text{dir}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) = L_0 \exp \left\{ - \int_0^s \beta_{\text{ext}} ds' \right\} \quad (1.40)$$

mit

$$L_0 = S_0 \delta(\vec{\Omega} - \vec{\Omega}_0), \quad (1.41)$$

wobei $\vec{\Omega}_0$ die Einfallsrichtung der direkten solaren Strahlung bezeichnet. $\delta(x-a)$ ist die Diracsche Delta-Funktion, welche durch die beiden Eigenschaften (1) $\delta(x-a) = 0$ für $x \neq a$ und (2) $\int \delta(x-a) dx = \begin{cases} 1, & \text{wenn } x = a \text{ im Integrationsgebiet liegt} \\ 0, & \text{sonst} \end{cases}$ definiert ist (*Jackson*, 1983).

Nun wird Gl. (1.37) unter Verwendung von Gl. (1.39) und Gl. (1.40) in Gl. (1.36) eingesetzt:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\beta_{\text{ext}}} \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} L^{\text{diff}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) &= -L^{\text{diff}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu, t) + (1 - \tilde{\omega}) B(T, \nu) \\ &+ \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \oint_{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}', \nu, t) L^{\text{diff}}(\vec{r}, \vec{\Omega}', \nu, t) d\Omega' \quad (1.42) \\ &+ \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}_0, \nu, t) S_0 \exp \left\{ - \int_0^s \beta_{\text{ext}} ds' \right\}. \end{aligned}$$

Der Zusatz „diff“ wird im Folgenden wieder weggelassen.

Das Integral

$$\tau_s = \int_0^s \beta_{\text{ext}} ds' \quad (1.43)$$

beschreibt die optische Dicke des Mediums entlang des Strahlweges s . Gl. (1.42) ist die Strahlungstransportgleichung der diffusen Strahldichte L . Die Änderung der spektralen Strahldichte L (linke Seite in Gl. (1.42)) ist somit abhängig von der Strahldichte L (1. Term der rechten Seite in Gl. (1.42)), der Temperaturstrahlung (2. Term), der vielfach gestreuten Strahlung (3. Term) und der einfach gestreuten Strahlung (4. Term). Zur Bestimmung der gesamten Strahldichte in Gl. (1.37) wird die direkte Strahlung in Gl. (1.40) und die diffuse Strahlung in Gl. (1.42) addiert.

Kapitel 2

Die optischen Eigenschaften der atmosphärischen Extingenten

In diesem Kapitel werden die optischen Eigenschaften der Luftmoleküle, Aerosolpartikel und Wolkentropfen beschrieben.

Abschnitt 2.1 bezieht sich auf die Streuung an Luftmolekülen und die Absorption durch Ozon und Stickstoffdioxid. Abschnitt 2.2 beschreibt die in der Atmosphäre vorhandenen Partikel, welche nicht wie die Moleküle in monodisperser Form, sondern in Größenverteilungen über mehrere Größenordnungen ausgedehnt, vorhanden sind. Das trifft sowohl auf die atmosphärischen Aerosolpartikel als auch auf Wolkentropfen zu. In Unterabschnitt 2.2.1 werden typische chemische Zusammensetzungen von Aerosolpartikeln, Größenverteilungen, Anzahlkonzentrationen und das Anwachsverhalten der Aerosolpartikel in feuchter Umgebung diskutiert. Unterabschnitt 2.2.2 beschreibt typische Wolkentropfenverteilungen. In Unterabschnitt 2.2.3 werden die Strahlungseigenschaften der Mie-Partikel, also der Aerosolpartikel und Wolkentropfen, abgeleitet. Damit ergeben sich die Extinktions-, Streu- und Absorptionskoeffizienten, aber auch die Phasenfunktion der gesamten Größenverteilungen der Partikel. Im abschließenden Abschnitt 2.3 werden die Extinktionseigenschaften der einzelnen Spezies zusammengefasst, um die Extinktion der gesamten Atmosphäre zu erhalten.

2.1 Luftmoleküle

Zur Bestimmung der Rayleigh-Streuung ist die Kenntnis der Anzahlkonzentration der Luftmoleküle N_{Luft} , an denen die einfallende Strahlung gestreut wird, notwendig. Der Volumenstreuoeffizient β_{ray} zur Beschreibung der Streuung an Molekülen, lässt sich über

$$\beta_{\text{ray}} = \sigma_{\text{ray}} N_{\text{Luft}}(z) \quad (2.1)$$

bestimmen, wobei σ_{ray} durch Gl. (1.17) und Gl. (1.18) bestimmt ist. Für die Einfachstreuung der Rayleigh-Streuung ergibt sich $\tilde{\omega}_{\text{ray}} = 1$, da durch diesen Ansatz lediglich die Streuung an den Molekülen beschrieben wird. Die Absorption durch die atmosphärischen Moleküle wird gesondert betrachtet.

Die Winkelverteilung der gestreuten Strahlung lässt sich aus der Phasenfunktion $\mathcal{P}(\cos \Theta)$ bestimmen. Die Bestimmung der Phasenfunktion über die Mie-Theorie nach Gl. (1.13) verursacht einen sehr hohen Rechenaufwand, da die Phasenfunktion neben dem Mie-Größenparameter x und dem Brechungsindex n auch vom Streuwinkel Θ abhängig ist. Deshalb wird zur Bestimmung der Phasenfunktion eine Reihenentwicklung in Legendre-Polynomen vorgenommen:

$$\mathcal{P}(\cos \Theta) = \sum_{i=0}^{\infty} p_i P_i(\cos \Theta) \quad (2.2)$$

mit den Entwicklungskoeffizienten p_i und den Legendre-Polynomen $P_i(\cos \Theta)$, definiert über

$$P_i(x) = \frac{1}{2^i i!} \frac{d^i}{dx^i} (x^2 - 1)^i. \quad (2.3)$$

Durch diese Reihenentwicklung wird das Problem auf die Bestimmung der Legendre-Koeffizienten reduziert. Im Fall isotroper Streuung gilt: $p_i = \delta_{0,i}$ ^[1]. Zur Berechnung der Phasenfunktion anisotroper Streuung wendet man auf Gl. (2.2) den Operator $\int_{-1}^1 \dots P_j(\cos \Theta) d \cos \Theta$ an. Dadurch ergibt sich unter Einbeziehung der Orthogonalitätsrelation der Legendre-Polynome

$$\int_{-1}^1 P_i(x) P_j(x) dx = \delta_{ij} \frac{2}{2i + 1} \quad (2.4)$$

für die Entwicklungskoeffizienten p_i folgende Beziehung:

$$p_i = \frac{2i + 1}{2} \int_{-1}^1 \mathcal{P}(\cos \Theta) P_i(\cos \Theta) d \cos \Theta. \quad (2.5)$$

^[1] $\delta_{i,j}$ ist das Kroneckersymbol, wobei $\delta_{i,j} = \begin{cases} 1, & \text{für } i = j \\ 0, & \text{für } i \neq j \end{cases}$.

Wegen der Normierung der Phasenfunktion (vgl. Gl. (1.12)) gilt $p_0 = 1$ für alle Streuwinkel Θ .

Zur Bestimmung der Legendre-Koeffizienten p_i in Gl. (2.5) ist ein geeigneter Ansatz für die Phasenfunktion $\mathcal{P}(\cos \Theta)$ notwendig. Für die Streuung an Luftmolekülen kann dieser Ansatz durch das Abstrahlverhalten eines elektromagnetischen Dipols angenähert werden. Für die Phasenfunktion folgt damit (*van de Hulst, 1980*):

$$\mathcal{P}(\cos \Theta) = \frac{3}{4}(1 + \cos^2 \Theta). \quad (2.6)$$

Durch Einsetzen der Gl. (2.6) in Gl. (2.5) unter Verwendung der Definition der Legendre-Polynome in Gl. (2.3) und anschließender Integration ergibt sich für die Phasenfunktion in Reihendarstellung:

$$\mathcal{P}(\cos \Theta) = P_0(\cos \Theta) + \frac{1}{2}P_2(\cos \Theta). \quad (2.7)$$

D.h. die Legendre-Koeffizienten $p_{\text{ray},i}$ der Rayleigh-Streuung lauten: $p_{\text{ray},0} = 1.0$ und $p_{\text{ray},2} = 0.5$. Alle übrigen $p_{\text{ray},i}$ sind gleich null.

Mit dieser Methode lässt sich die Streuung an atmosphärischen Molekülen beschreiben. Die Absorption ist darin noch nicht beinhaltet.

Die im relevanten Wellenlängenbereich absorbierenden Moleküle sind die Spurengase Ozon und Stickstoffdioxid. Die Absorptionskoeffizienten von Ozon β_{O_3} und Stickstoffdioxid β_{NO_2} werden über den Absorptionsquerschnitt (Abb. 1.4 und Abb. 1.5) und die Molekülanzahl N_{O_3} bzw. N_{NO_2} , in cm^{-3} , abhängig von der Höhe z bestimmt. Die temperaturabhängigen Absorptionsquerschnitte werden entsprechend des vertikalen Temperaturprofils, auf die herrschende Temperatur $T(z)$ interpoliert. Die Absorptionskoeffizienten lauten damit:

$$\beta_{\text{O}_3} = \sigma_{\text{O}_3}(T, z) N_{\text{O}_3}(z) \quad (2.8)$$

$$\beta_{\text{NO}_2} = \sigma_{\text{NO}_2}(T, z) N_{\text{NO}_2}(z). \quad (2.9)$$

Da mit diesem Ansatz lediglich die Absorption durch die Moleküle behandelt wird (die Streuung an den Molekülen ist bereits in der Rayleigh-Streuung beinhaltet), verschwinden sowohl die Einfachstreueralbeden für die Absorption durch Ozon $\tilde{\omega}_{\text{O}_3} = 0$ und Stickstoffdioxid $\tilde{\omega}_{\text{NO}_2} = 0$, als auch die Legendre-Koeffizienten $p_i = 0$, für alle i .

2.2 Mie-Partikel

2.2.1 Aerosolpartikel

Ein disperses System mit Luft als Dispersionsmittel und einer festen und/oder flüssigen dispersen Phase heißt Aerosol. Im Gegensatz zu den Molekülen der atmosphärischen Gase, zeigen die Aerosolpartikel eine große Diversität in Volumen, Größe, Form, chemischer Zusammensetzung und damit auch den optischen Eigenschaften. Die Quellen dieser Partikel sind ebenso vielfältig: Abgase aus Industrie, Verkehr und Haushalten, Vulkanausbrüche, Sandstürme, Wald- und Rodungsbrände und viele andere mehr. Außerdem befinden sich auch biologische Partikel wie z.B. Pollen und marine Seesalzpartikel im atmosphärischen Aerosol.

Chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel

Eine grobe Einteilung des Aerosols nach Herkunft und somit auch chemischer Zusammensetzung erfolgt durch den Aerosoltyp. Rurales Aerosol hat seine Quellen in ländlichen Regionen. Nach *Shettle und Fenn* (1979) besteht rurales Aerosol zu 70% aus wasserlöslichen Substanzen, wie Ammonium- und Kalziumsulfat aber auch organischen Komponenten, und zu 30% aus Staub. Urbanes Aerosol dagegen hat seinen Ursprung in städtischer Umgebung und besteht zu 80% aus ruralem Aerosol und zu 20% aus Ruß (*Shettle und Fenn*, 1979).

Andere Aerosoltypen beschreiben maritimes, mineralisches, polares, stratosphärisches oder auch troposphärisches Aerosol.

Brechungsindex der Aerosolpartikel

Die unterschiedliche chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel führt zu unterschiedlichen Brechungsindizes n_p . Zur Bestimmung der Brechungsindizes der verschiedenen Aerosoltypen wurde angenommen (*Shettle und Fenn*, 1979), dass die Aerosolpartikel intern homogen gemischt sind und der Brechungsindex aus der mit dem Volumenanteil gewichteten Mittelung der Brechungsindizes jeder einzelnen Komponente berechnet werden kann.

In Abb. 2.1 ist der komplexe Brechungsindex von urbanem n_{urb} und ruralem Aerosol n_{tur} im Vergleich zum Brechungsindex von reinem Wasser n_{was} dargestellt. Urbanes Aerosol ist durch die durchgezogene Linie, rurales Aerosol durch die gepunktete Linie (*Shettle und Fenn*, 1979) und reines Wasser (*Hale und Querry*, 1973) durch die

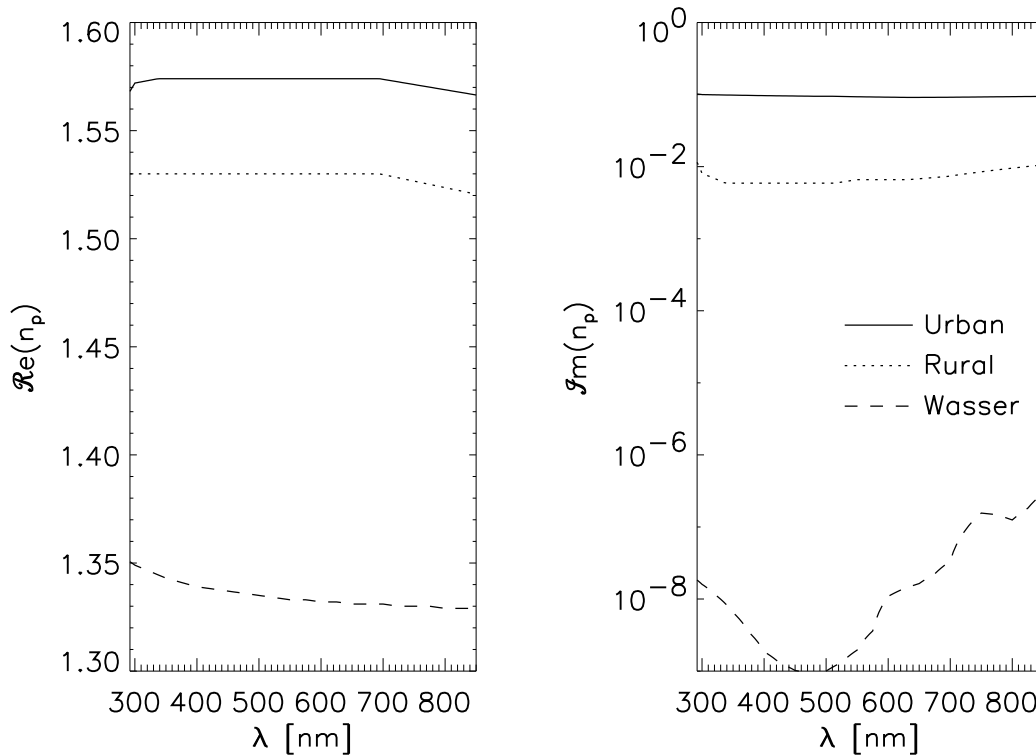


Abbildung 2.1: Die Abbildung zeigt den Realteil $\Re(n_p)$ (links) und den Imaginärteil $\Im(n_p)$ (rechts) des urbanen und ruralen Aerosols und reinen Wassers in Abhängigkeit von λ .

gestrichelte Linie gekennzeichnet.

Der Imaginärteil (Abb. 2.1, rechts) des urbanen Aerosols $\Im(n_{\text{urb}})$ ist wegen des höheren Rußanteils um eine Größenordnung größer als der Imaginärteil des ruralen Aerosols $\Im(n_{\text{rur}})$. Dies beschreibt die höhere Absorption des urbanen Aerosols.

$\Im(n_{\text{rur}})$ ist bei $\lambda = 292$ nm mit $1.15 \cdot 10^{-2}$ am größten und bei $\lambda = 340$ nm bis $\lambda = 510$ nm mit $5.9 \cdot 10^{-3}$ am geringsten. Das Maximum von $\Im(n_{\text{urb}})$ liegt ebenfalls bei $\lambda = 292$ nm und beträgt $1.02 \cdot 10^{-1}$. Sein Minimum liegt bei $\lambda = 635$ nm mit einem Wert von $9.13 \cdot 10^{-2}$. Es ist also eine leichte Wellenlängenabhängigkeit von $\Im(n_{\text{urb,rur}})$ vorhanden.

$\Im(n_{\text{was}})$ schwankt zwischen $9.35 \cdot 10^{-10}$ bei $\lambda = 475$ nm und $2.93 \cdot 10^{-7}$ bei $\lambda = 850$ nm. Der Imaginärteil und somit die Absorption des Wassers ist also um Größenordnungen niedriger als die des Aerosols.

Aerosolgrößenverteilung

Auch die Größenverteilung der Partikel unterscheidet sich für die beiden Aerosoltypen urbanes und rurales Aerosol.

Zur Beschreibung der Größenverteilung der Aerosolpartikel wird oftmals eine logarithmische Normalverteilung verwendet. Die Anzahl der Moden der Verteilung variiert je nach Aerosoltyp und Autor. Die Verteilungsfunktion ist festgelegt durch die Anzahlkonzentration N_{aer} der Partikel, deren Modenradius $r_{\text{aer},i}$ und der entsprechenden Standardabweichung $\sigma_{\text{aer},i}$, wobei sich der Index i auf die Mode bezieht. Bei Verwendung der normierten Anzahlgrößenverteilung geht anstatt N_{aer} der Parameter $n_{\text{aer},i}$ in die logarithmische Normalverteilung ein, wobei $\sum_{i=1}^m n_{\text{aer},i} = 1$:

$$\frac{dN_{\text{aer}}}{d \log r} = N_{\text{aer}} \frac{dn_{\text{aer}}}{d \log r} = \sum_{i=1}^m \frac{n_{\text{aer},i}}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_{\text{aer},i}} \exp \left\{ -\frac{\left(\log \frac{r}{r_{\text{aer},i}} \right)^2}{2 (\log \sigma_{\text{aer},i})^2} \right\}. \quad (2.10)$$

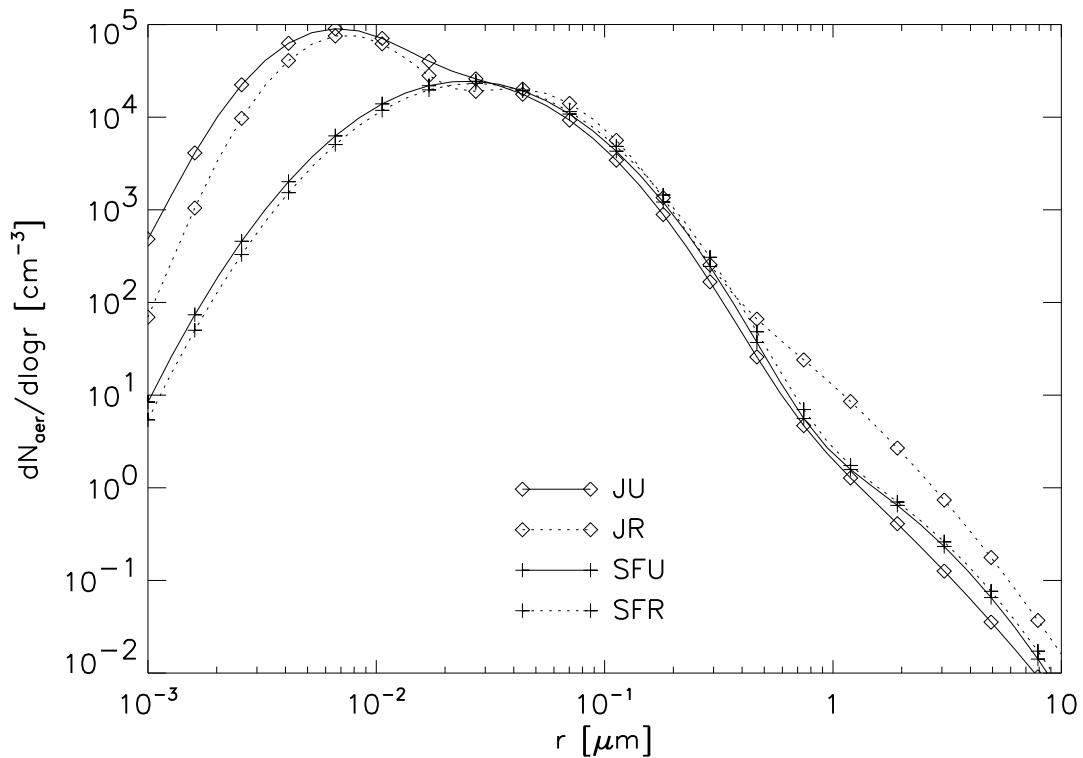


Abbildung 2.2: $dN_{\text{aer}}/d \log r$ in der bodennahen Schicht für die Aerosolmodelle *JU*, *JR*, *SFU* und *SFR*.

Abb. 2.2 stellt verschiedene Anzahlgrößenverteilungen des Aerosols in Bodennähe dar, welche auf der logarithmischen Normalverteilung entsprechend Gl. (2.10) basieren. Die mit Rauten gekennzeichnete, durchgezogene Linie stellt die trimodale Verteilung des urbanen Aerosols nach *Jaenicke* (1988) dar und wird im Folgenden mit *JU* bezeichnet. Im Vergleich dazu zeigt die mit Rauten gekennzeichnete, gepunktete Linie, die ebenfalls trimodale Anzahlverteilung des ruralen Aerosols nach *Jaenicke* (1988), welche mit *JR* bezeichnet wird. Tab. 2.1 enthält die prozentuale

| Aerosolmodell | Mode | $n_{\text{aer},i}$, % | $r_{\text{aer},i}$, μm | $\log \sigma_{\text{aer},i}$ |
|---------------|------|------------------------|------------------------------------|------------------------------|
| <i>JU</i> | 1 | 72.6 | $6.51 \cdot 10^{-3}$ | 0.245 |
| | 2 | 0.7 | $7.14 \cdot 10^{-3}$ | 0.666 |
| | 3 | 26.6 | $2.48 \cdot 10^{-2}$ | 0.337 |
| <i>JR</i> | 1 | 75.7 | $7.39 \cdot 10^{-3}$ | 0.225 |
| | 2 | 1.7 | $2.69 \cdot 10^{-2}$ | 0.557 |
| | 3 | 22.7 | $4.19 \cdot 10^{-2}$ | 0.266 |

Tabelle 2.1: Verteilungsparameter nach *Jaenicke* (1988). $n_{\text{aer},i}$ ist die normierte Aerosolanzahlkonzentration, $r_{\text{aer},i}$ der Modenradius und $\sigma_{\text{aer},i}$ die Standardabweichung der Mode i .

Aufteilung der Anzahlkonzentration auf die einzelnen Moden i der Verteilung $n_{\text{aer},i}$, die Standardabweichung $\sigma_{\text{aer},i}$ und den Modenradius $r_{\text{aer},i}$, welche für die beiden trimodalen Verteilung *JU* und *JR* in Gl. (2.10) eingehen.

Die mit Pluszeichen gekennzeichnete, durchgezogene Linie bezieht sich auf die bimodale Größenverteilung für urbanes Aerosol von *Shettle und Fenn* (1979). Bezeichnet wird diese mit *SFU*. Die mit Pluszeichen gekennzeichnete, gepunktete Linie bezieht sich auf die rurale Anzahlgrößenverteilung von *Shettle und Fenn* (1979), welche mit *SFR* abgekürzt wird. Die Verteilungsparameter sind in Tab. 2.2 enthalten.

| Aerosolmodell | Mode | $n_{\text{aer},i}$, % | $r_{\text{aer},i}$, μm | $\log \sigma_{\text{aer},i}$ |
|---------------|------|------------------------|------------------------------------|------------------------------|
| <i>SFU</i> | 1 | 99.99 | $2.5 \cdot 10^{-2}$ | 0.35 |
| | 2 | 0.01 | $4.0 \cdot 10^{-1}$ | 0.40 |
| <i>SFR</i> | 1 | 99.99 | $2.7 \cdot 10^{-2}$ | 0.35 |
| | 2 | 0.01 | $4.3 \cdot 10^{-1}$ | 0.40 |

Tabelle 2.2: Verteilungsparameter nach *Shettle und Fenn* (1979).

Ein Vergleich der Verteilungsparameter aus Tab. 2.1 mit Tab. 2.2 zeigt, dass bei *Shettle und Fenn* (1979) die Moden bei größeren Radien liegen und damit die Anzahl

der Partikel kleiner $0.02\ \mu\text{m}$ in dieser Verteilung wesentlich geringer ist als in den Verteilungen *JR* und *JU*. Der Modenradius der 3. Mode des Aerosolmodells *JU* entspricht dem Modenradius der 1. Mode des Aerosolmodells *SFU*. Der Modenradius der 2. Mode des Aerosolmodells *JR* und der Modenradius der 1. Mode des Aerosolmodells *SFR* sind nahezu gleich. Die 2. Mode des Aerosolmodells *SFR* ist jedoch deutlich größer als die 3. Mode des Aerosolmodells *JR*. Ein Vergleich der Modenradien in Tab. 2.1 und Tab. 2.2 zeigt auch, dass die Modenradien im urbanen Fall zu kleineren Radien verschoben sind als bei ruralem Aerosol.

Vertikalprofil der Aerosolanzahlkonzentration

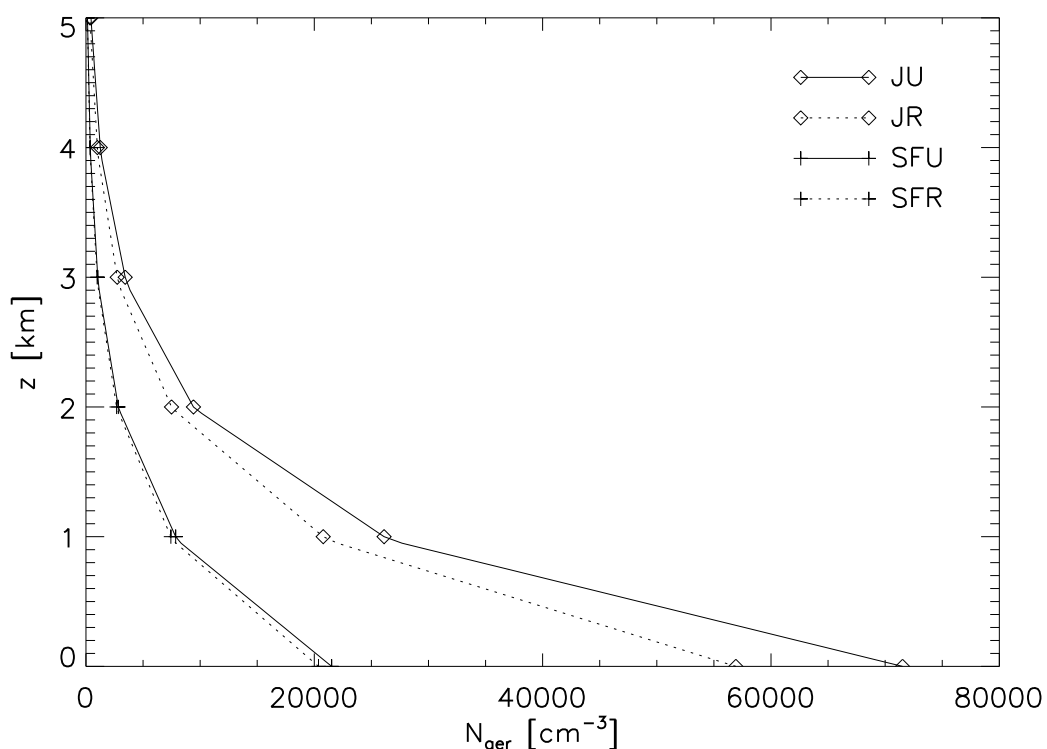


Abbildung 2.3: Vertikalprofil der Aerosolanzahlkonzentration nach *McClatchey* (1971) für die Verteilungen *JU*, *JR*, *SFU* und *SFR*.

Zur Beschreibung eines Standardprofils für die Vertikalverteilung der Aerosolanzahlkonzentration N_{aer} wurde auf Literaturwerte von *McClatchey* (1971) für eine verschmutzte Atmosphäre mit 5 km Sichtweite zurückgegriffen. Die in dieser Veröffentlichung angegebene Aerosolanzahlkonzentration bezieht sich auf den Radiusbereich

zwischen $0.2 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$.

Zur Bestimmung der optischen Eigenschaften des Aerosols werden in der Simulation jedoch Partikel ab $0.001 \mu\text{m}$ Radius berücksichtigt, da auch Aerosolpartikel mit Radien kleiner $0.2 \mu\text{m}$ die Strahlung signifikant beeinflussen (vgl. Abschnitt 2.2.3). Um im Radiusbereich zwischen $0.2 \mu\text{m}$ bis $10 \mu\text{m}$ die von *McClatchey* (1971) angegebene Aerosolanzahlkonzentration beizubehalten, muss eine Skalierung der Aerosolanzahlkonzentration vorgenommen werden. Der Skalierungsfaktor für *JR* beträgt dabei 4.2, der für *JU* beträgt 5.3, der für *SFR* beträgt 1.5 und der für *SFU* beträgt 1.6. Dadurch ergeben sich für die vier betrachteten Aerosolmodelle *JU*, *JR*, *SFU* und *SFR* vier unterschiedliche Aerosolanzahlkonzentrationen in dem für das Modell relevanten Radiusbereich zwischen $0.001 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$, wobei die Aerosolanzahlkonzentration im Radiusbereich zwischen $0.2 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$ bei allen Aerosolmodellen gleich ist und der in *McClatchey* (1971) angegebenen entspricht. Dargestellt sind diese in Abb. 2.3. Die mit Rauten gekennzeichnete, durchgezogene Linie stellt N_{aer} für das Aerosolmodell *JU* dar. Das Aerosolmodell *JR* wird durch die mit Rauten gekennzeichnete, gepunktete Linie beschrieben. Die mit Pluszeichen gekennzeichnete, durchgezogene Linie beschreibt das Aerosolmodell *SFU* und die mit Pluszeichen gekennzeichnete, gepunktete Linie das Aerosolmodell *SFR*.

Aus Abb. 2.3 ist erkennbar, dass die Aerosolanzahlkonzentration des urbanen Aerosols größer ist als die des ruralen Aerosols, was auf die geringeren Modenradien beim urbanen Aerosoltyp zurückzuführen ist. Ist der Modenradius, wie im Fall des urbanen Aerosols, kleiner als $0.2 \mu\text{m}$, so ist die Aerosolanzahlkonzentration bei $r < 0.2 \mu\text{m}$ sehr hoch. Der Skalierungsfaktor, welcher die von *McClatchey* (1971) angegebene Partikelanzahl im Radiusbereich zwischen $0.2 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$ gewährt, ist dadurch groß. Der Unterschied zwischen den Aerosoltypen rural und urban ist bei der bimodalen Verteilung von *Shettle und Fenn* (1979) wesentlich geringer als der Unterschied zwischen den Aerosolmodellen *JU* und *JR*.

Deutlich erkennbar ist in Abb. 2.3 außerdem, dass sich die größte Aerosolanzahlkonzentration in der untersten Schicht der Atmosphäre mit einer vertikalen Ausdehnung von 2 km befindet. Diese Schicht wird im Weiteren als Aerosolschicht bezeichnet.

Anwachsverhalten der Aerosolpartikel

Die bisher betrachteten Aerosolgrößenverteilungen bezogen sich lediglich auf trockene Aerosolpartikel. Der in der Atmosphäre vorhandene Wasserdampf führt jedoch

zum Aufquellen der Partikel. Das Ausmaß des Anwachsens ist abhängig von der relativen Feuchte rh der umgebenden Luftmassen, sowie der chemischen Zusammensetzung, d.h. der Löslichkeit der Partikel selbst. Analytisch lässt sich die Beziehung zwischen trockenem und feuchtem Aerosolradius wie folgt beschreiben:

$$r_f = r \left(1 + \frac{\rho_0 m_w}{\rho_w m_0} \right)^{1/3}. \quad (2.11)$$

Die mit 0 indizierten Größen beziehen sich dabei auf die Eigenschaften des trockenen Aerosolpartikels: ρ_0 entspricht der Dichte und m_0 der Masse des trockenen Partikels. Die mit w indizierten Größen dagegen beziehen sich auf die Eigenschaften von Wasser. Somit ist ρ_w die Dichte und m_w die Masse des angelagerten Flüssigwassers. Der resultierende Radius des gequollenen Aerosolpartikels ist der Feuchtradius und wird mit r_f bezeichnet.

Zur Bestimmung der angelagerten Wassermasse m_w und des feuchten Partikelradius r_f in Abhängigkeit von der relativen Feuchte der umgebenden Luftmasse rh existieren unterschiedliche Methoden, die im Folgenden kurz beschrieben werden.

Bestimmung der Feuchtradien nach Shettle und Fenn

Diese Autoren schlagen ein iteratives Verfahren zur Bestimmung der Feuchtradien $r_f(a_w)$ in Abhängigkeit von der Wasseraktivität a_w vor. Die Wasseraktivität entspricht im Wesentlichen der relativen Feuchte, ist jedoch für die Krümmung der Partikeloberfläche korrigiert. Der Gültigkeitsbereich dieses Verfahrens liegt bei relativen Feuchten $rh \leq 99\%$ und Trockenradien $r \geq 0.01 \mu\text{m}$. Als Näherung für die Wasseraktivität kann folgender Zusammenhang verwendet werden:

$$a_w = rh \exp \left(\frac{-0.001056}{r_f(a_w)} \right), \quad (2.12)$$

wobei r_f in μm anzugeben ist. Die Konstante im Zähler des Exponenten setzt sich aus dem Verhältnis der Oberflächenspannung des feuchten Aerosolpartikels und dem spezifischen Volumen von Wasser zur Gaskonstante von Wasserdampf und der Temperatur zusammen. Sie hat ebenfalls die Dimension μm .

Als Anfangswert der Iteration wird für die Wasseraktivität $a_w = rh$ gesetzt. Im ersten Schritt der Iteration wird der Quotient m_w / m_0 in Gl. (2.11) in Abhängigkeit von a_w über Tabellenwerte bestimmt. Solche Tabellen existieren in Hänel (1976) für verschiedene Aerosoltypen. Anschließend wird der Feuchtradius mit Gl. (2.11) berechnet. Der resultierende Feuchtradius r_f geht nun in Gl. (2.12) ein. Damit

lässt sich ein iterierter Wert für die Wasseraktivität a_w bestimmen. Die Iteration ist beendet, wenn die Differenz der beiden zuletzt bestimmten Feuchtradien hinreichend klein ist.

Bestimmung der Feuchtradien nach Hänel

Das von *Hänel* (1976) vorgeschlagene Verfahren berechnet den Feuchtradius unter teilweiser Berücksichtigung der Krümmung der Partikeloberfläche. Es hat seinen Gültigkeitsbereich zwischen 70% und 99% relativer Feuchte rh und trockenen Partikelradien mit $r \geq 0.04 \mu\text{m}$. Es folgt der Gleichung:

$$r_f \simeq r \left(1 + \frac{\rho_0}{\rho_w} \gamma(rh) \frac{rh}{1-rh} \right)^{1/3} - 1.056 \cdot 10^{-7} \frac{rh}{1-rh} \left(1 + \frac{\rho_0}{\rho_w} \gamma(rh) \frac{rh}{1-rh} \right)^{-1/3}. \quad (2.13)$$

Der Wachstumskoeffizient γ in Abhängigkeit von der relativen Feuchte rh wird aus Tabellen entnommen (*Hänel*, 1976), welche die chemische Zusammensetzung der Partikel in Form der Aerosoltypen berücksichtigt.

Bestimmung der Feuchtradien nach Köhler

Die Köhlergleichung beschreibt die Gleichgewichtsbeziehung eines aufgequollenen Aerosolpartikels mit Radius r_f , welcher sich bei herrschender relativen Feuchte rh bei einem trockenen Partikel mit Radius r einstellt (*Pruppacher und Klett*, 1997):

$$\ln rh = \frac{A}{r_f} - \frac{Br^3}{r_f^3 - r^3}. \quad (2.14)$$

Gl. (2.14) ist für alle Partikelradien und einer relativen Feuchten größer 80% und kleiner 100% gültig. Der erste Summand beschreibt dabei den Krümmungseffekt mit

$$A = \frac{2 \sigma_w \bar{m}_w}{R_w T \rho_w}. \quad (2.15)$$

\bar{m}_w ist dabei die molare Masse von Wasser, σ_w die Oberflächenspannung von Wasser in Luft, R_w die Gaskonstante von Wasserdampf, T die Temperatur der umgebenden Luftmasse und ρ_w die Dichte von Wasser. Der zweite Summand beschreibt den Lösungseffekt mit

$$B = \frac{\nu_1 \varepsilon \phi_s \bar{m}_w \rho_0}{\bar{m}_s \rho_w}. \quad (2.16)$$

Dabei beschreibt ν_1 die Anzahl der Ionen, in welche das Molekül zerfällt, wenn es in Lösung geht. ε ist ein Maß für die Löslichkeit des Partikels. Der osmotische Koeffizient ϕ_s beschreibt, inwieweit sich die Lösung ideal verhält. Dieser Koeffizient kann für hinreichend große Partikel, wie sie hier betrachtet werden, gleich 1 gesetzt werden (*Pruppacher und Klett, 1997*). Das entspricht einer idealen Lösung. \bar{m}_s ist die molare Masse des löslichen Anteils.

Gl. (2.14) kann umgeschrieben werden zu:

$$\ln rh \, r_f^4 - A \, r_f^3 + (B - \ln rh) \, r^3 \, r_f + A \, r^3 = 0. \quad (2.17)$$

Die Lösung dieses Polynoms 4. Grades erfolgt mit der Laguerre-Methode. Bei Sättigung, d.h. $\ln rh = 0$, reduziert sich der Grad des Polynoms auf drei. Das ermöglicht die analytische Lösung der Gleichung mit Hilfe der Cardanischen Lösungsformel.

Vergleich der Anwachsverfahren

Abb. 2.4 zeigt die resultierenden Feuchtradien unter Verwendung der unterschiedlichen Anwachsverfahren für Aerosolpartikel, welche aus reinem Ammoniumsulfat ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) bestehen. Die linke Abb. 2.4 zeigt den Wachstumsfaktor

$$\kappa = r_f/r \quad (2.18)$$

für $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ bei 80% relativer Feuchte. Die durchgezogene Linie ergibt sich bei Berechnung des Feuchtradius mittels des Verfahrens nach *Shettle und Fenn*, die gepunktete Linie nach *Hänel* und die gestrichelte Kurve nach *Köhler*. Die Rauten entsprechen Messungen von *Hänel* (1976). Die rechte Abb. 2.4 zeigt die gleiche Untersuchung bei 90% relativer Feuchte.

In beiden Fällen wird deutlich, dass die Übereinstimmung zwischen den Messwerten von *Hänel* (1976) und den Modellergebnissen des Anwachsverfahrens nach *Köhler* am Besten ist. Die beiden anderen Verfahren überschätzen den Wachstumsfaktor deutlich. Aus diesem Grund wird auch im Folgenden die Methode von *Köhler* zur Berechnung der Feuchtradien verwendet.

Änderung der Aerosolgrößenverteilung durch das Anwachsen der Aerosolpartikel

Aus Abb. 2.4 wird ebenfalls deutlich, dass größere Partikel stärker anwachsen als kleine Partikel. Das ist auf die höhere Oberflächenspannung der kleineren Partikel

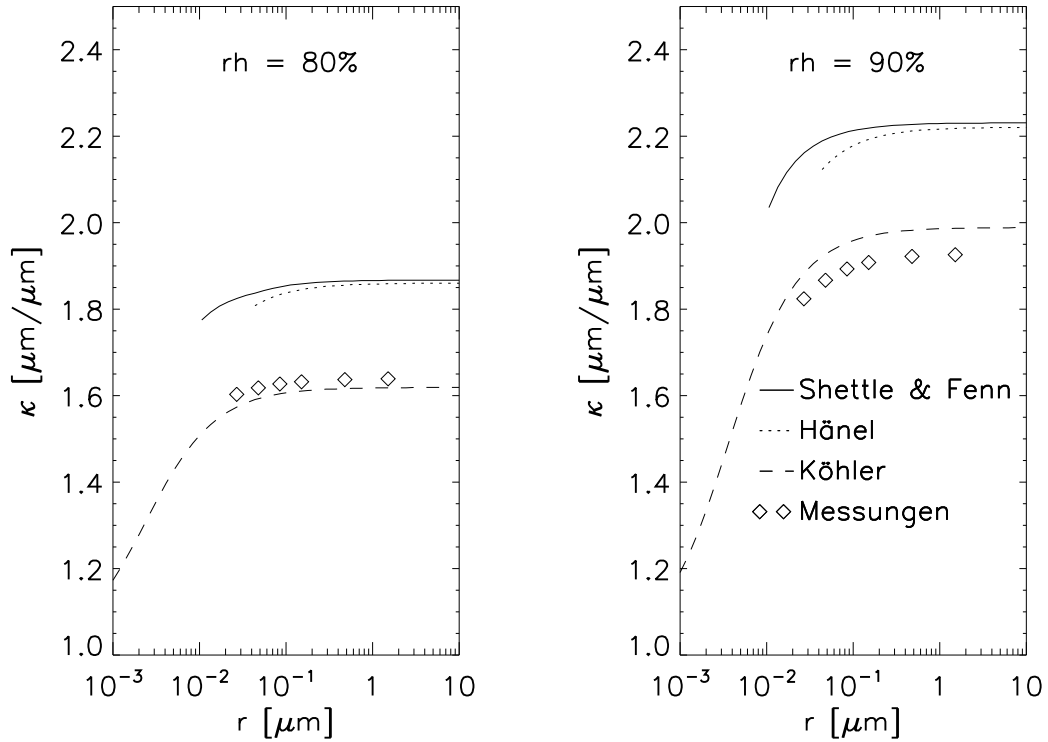


Abbildung 2.4: Wachstumsfaktor κ bei $rh = 80\%$ (links) und $rh = 90\%$ (rechts) für $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ für das Verfahren nach *Shettle und Fenn*, nach *Hänel* und nach *Köhler* zur Berechnung des feuchten Radius r_f im Vergleich zu den Messungen von *Hänel* (1976).

zurückzuführen. Um das unterschiedliche Anwachsverhalten in der Aerosolgrößenverteilung zu berücksichtigen werden die ursprünglich logarithmisch äquidistanten Intervallbreiten $d \log r$ zu $d \log r_f$ verändert. Deshalb muss auch die Aerosolgrößenverteilung der feuchten Partikel $dN_{\text{aer}_f}/d \log r_f$ an das neue Radiusgitter $d \log r_f$ angepasst werden.

Zur Berechnung von $d \log r_f$ wird für jeden Mittelpunkt des Radiusintervalls der trockenen Verteilung r der Feuchtradius r_f berechnet. Analog zur Berechnung der Intervallbreiten der trockenen Verteilung $d \log r$ über

$$d \log r = d \log \sqrt{\frac{r_{i+1}}{r_{i-1}}}, \quad (2.19)$$

ergeben sich die Intervallbreiten der feuchten Verteilung:

$$d \log r_f = d \log \sqrt{\frac{r_{f_{i+1}}}{r_{f_{i-1}}}}. \quad (2.20)$$

Die Indizierung i bezieht sich dabei auf das i -te Radiusintervall. Durch die Veränderung der Radiusintervallbreite verändert sich auch die Aerosolanzahlkonzentration pro Radiusintervall dN_{aer_f} . Dazu muss die am Intervallmittelpunkt vorliegende Aerosolanzahlkonzentration der trockenen Aerosolverteilung N_{aer} mit dem Quotienten aus alter Intervallbreite $d \log r$ und neuer Intervallbreite $d \log r_f$ multipliziert werden:

$$dN_{\text{aer}_f} = dN_{\text{aer}} \frac{d \log r}{d \log r_f}. \quad (2.21)$$

Im Folgenden wird der Index „f“ zur Beschreibung der feuchten Aerosolverteilung wieder weggelassen.

Bestimmung des Wasseranteils im Aerosolpartikel

Zur Bestimmung der Strahlungseigenschaften der Partikel ist die chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel von großer Bedeutung. Da durch das Aufquellen der Aerosolpartikel der Brechungsindex der Partikel verändert wird, ist die Bestimmung des Wasseranteils ξ im Aerosolpartikel notwendig. Der Brechungsindex der gequollenen Aerosolpartikel wird aus dem Brechungsindex des reinen Aerosols und reinen Wassers unter Berücksichtigung des Wasseranteils ξ bestimmt. Die Berechnungen in Gl. (1.6), Gl. (1.7) und Gl. (1.16) werden deshalb für unterschiedliche Wasseranteile ξ ausgeführt.

Der Wasseranteil ξ im Aerosolpartikel lässt sich über die Differenz zwischen 1 und dem Quotienten aus trockener und feuchter Partikelmasse m_0 und m_f :

$$\xi(r) = \frac{m_f - m_0}{m_f} = 1 - \frac{\rho_0 r^3}{\rho_f r_f^3} \quad (2.22)$$

berechnen. Die Dichte des gequollenen Aerosolpartikels ρ_f wird berechnet über:

$$\rho_f = \xi(r) \rho_w + (1 - \xi(r)) \rho_0. \quad (2.23)$$

Durch Einsetzen der Gl. (2.23) in Gl. (2.22) ergibt sich eine quadratische Gleichung in $\xi(r)$:

$$\xi^2(r) - \xi(r) \left(1 - \frac{\rho_0}{\rho_w - \rho_0} \right) - \frac{\rho_0}{\rho_w - \rho_0} \frac{r_f^3 - r^3}{r_f^3} = 0. \quad (2.24)$$

Um den mittleren Wasseranteil über alle Radiusbereiche ξ zu erhalten, wird $\xi(r)$ mit der normierten Aerosolgrößenverteilung der feuchten Partikel $dn_{\text{aer}}/d \log r$ gewichtet und über den gesamten Radiusbereich integriert:

$$\xi = \int_0^{\infty} \frac{dn_{\text{aer}}}{d \log r} \xi(r) d \log r. \quad (2.25)$$

Ist $\xi = 0$, so bestehen die Partikel aus reinem Aerosol, sind also nicht gequollen. Ist $\xi = 1$, so bestehen die Partikel aus reinem Wasser.

2.2.2 Wolkentropfen

Eine Wolke ist eine Anhufung atmospharischer Kondensations- oder Sublimationsprodukte des Wasserdampfes. Da die Temperatur in der Troposphare, wo sich die meisten Wolken bilden, sowohl oberhalb als auch weit unterhalb des Gefrierpunktes von Wasser liegen kann, konnen sich sowohl Flussigwasser- als auch Eiswolken entwickeln. Es existieren auch Mischwolken, die Wassertropfen, Eispartikel und Mischaggregate enthalten. Der Modenradius der Wolkentropfen liegt i.A. zwischen $2 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$. In Wolken, in denen eine starke Vertikalbewegung auftritt, konnen jedoch auch Tropfen mit bedeutend groeren Radien vorkommen. Die geometrische Ausdehnung und Position der Wolken ist sehr variabel in Raum und Zeit und eng mit der Art der Entstehung verknupft (*Pruppacher und Klett, 1997*).

Eine warme Wolke besteht aus Wassertropfen unterschiedlicher Groe, interstitiellem Aerosol und Aerosolpartikeln, welche mit einer Flussigkeitsschicht umgeben sind. Die physikalischen Eigenschaften einer Wolke lassen sich uber die Anzahlgroenverteilung der Wolkentropfen $dN_{\text{dro}}/d \log r$ und die geometrische Ausdehnung der Wolke beschreiben. Die Groenverteilung der Wolkentropfen $dN_{\text{dro}}/d \log r$ wird uber die normierte Groenverteilung $dn_{\text{dro}}/d \log r$ und die Anzahlkonzentration an Wolkentropfen N_{dro} berechnet:

$$\frac{dN_{\text{dro}}}{d \log r} = N_{\text{dro}} \frac{dn_{\text{dro}}}{d \log r}. \quad (2.26)$$

Die Beschreibung der normierten Groenverteilung der Wolkentropfen $dn_{\text{dro}}/d \log r$ erfolgt haufig mit einer monomodalen, logarithmischen Normalverteilung:

$$\frac{dn_{\text{dro}}}{d \log r} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_{\text{dro}}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{\log \frac{r}{r_{\text{dro}}}}{\log \sigma_{\text{dro}}} \right)^2 \right\}. \quad (2.27)$$

Die Verteilungsparameter, welche die Wolke charakterisieren, sind darin der Modenradius r_{dro} und die Standardabweichung σ_{dro} .

In Tab. 2.3 sind die Tropfenanzahl N_{dro} , der Flussigwassergehalt Q_l und der Modenradius r_{dro} unterschiedlicher Wolkentypen nach *Stephens (1978)* aufgelistet. Die ebenfalls in Tab. 2.3 enthaltene Standardabweichung σ_{dro} wurde uber die Definition der Verteilungsmomente bestimmt. Allgemein lautet die Definition des k-ten

| Wolkentyp | N_{dro} (cm^{-3}) | Q_l (g m^{-3}) | r_{dro} (μm) | σ_{dro} |
|------------------|---------------------------------------|-----------------------------|------------------------------------|-----------------------|
| Stratus-I | 440 | 0.22 | 3.50 | 1.61 |
| Stratus-II | 120 | 0.05 | 2.25 | 2.00 |
| Stratocumulus-I | 350 | 0.14 | 3.50 | 1.52 |
| Stratocumulus-II | 150 | 0.47 | 7.50 | 1.43 |
| Nimbostratus | 280 | 0.50 | 3.50 | 2.04 |
| Altostratus | 430 | 0.28 | 4.50 | 1.41 |
| Cumulus | 300 | 1.00 | 5.50 | 1.80 |
| Cumulonimbus | 72 | 2.50 | 6.00 | 2.46 |

Tabelle 2.3: Beschreibung der unterschiedlichen Wolkentypen nach *Stephens* (1978).

Moments für eine monomodale, logarithmische Normalverteilung (*Lenoble und Brogniez*, 1984):

$$M_k = r_m^k \exp \left\{ \frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_s \right\} = \int_0^\infty r^k \frac{dn}{d \log r} dr \quad (2.28)$$

mit der Standardabweichung σ_s und dem Modenradius r_m . Der Flüssigwassergehalt Q_l der Wolke ist über das dritte Moment der Verteilung definiert:

$$Q_l = \frac{4\pi}{3} \rho_w N_{\text{dro}} \int_0^\infty \frac{dn_{\text{dro}}}{d \log r} r^3 dr = \frac{4\pi}{3} \rho_w N_{\text{dro}} M_3. \quad (2.29)$$

Identifiziert man in Gl. (2.28) k mit 3 und setzt für das dritte Moment den Zusammenhang aus Gl. (2.29) ein, so lässt sich Gl. (2.28) nach σ_{dro} auflösen:

$$\sigma_{\text{dro}} = \exp \left\{ \sqrt{\frac{2}{9} \ln \left(\frac{3 Q_l}{4\pi \rho_w N_{\text{dro}} r_{\text{dro}}^3} \right)} \right\}. \quad (2.30)$$

Ein graphischer Überblick über die Tropfengrößenverteilungen der unterschiedlichen Wolkentypen ist in Abb. 2.5 dargestellt. Die weltweit am häufigsten auftretenden Wolken sind die *Stratus-Wolken*. Stratus-Wolken sind flache Schichtwolken, die sich häufig im Höhenbereich von 500 m bis etwa 1000 m ausbilden und keine Eisteilchen enthalten. Die beiden Stratus-Typen I und II in Tab. 2.3 repräsentieren die beiden Extrema, die eine Stratus-Wolke annehmen kann, mit einem hohen (dicke, durchgezogene Linie in Abb. 2.5) bzw. niedrigen Flüssigwassergehalt (dicke, gepunktete Linie). *Stratocumulus-Wolken* sind Haufenschichtwolken, die in den mittleren Breiten in Höhen von etwa 1000 m bis 2000 m anzutreffen sind. Sie sind reine Wasserwolken. Ihr Flüssigwassergehalt ist normalerweise zu gering um Niederschlag zu

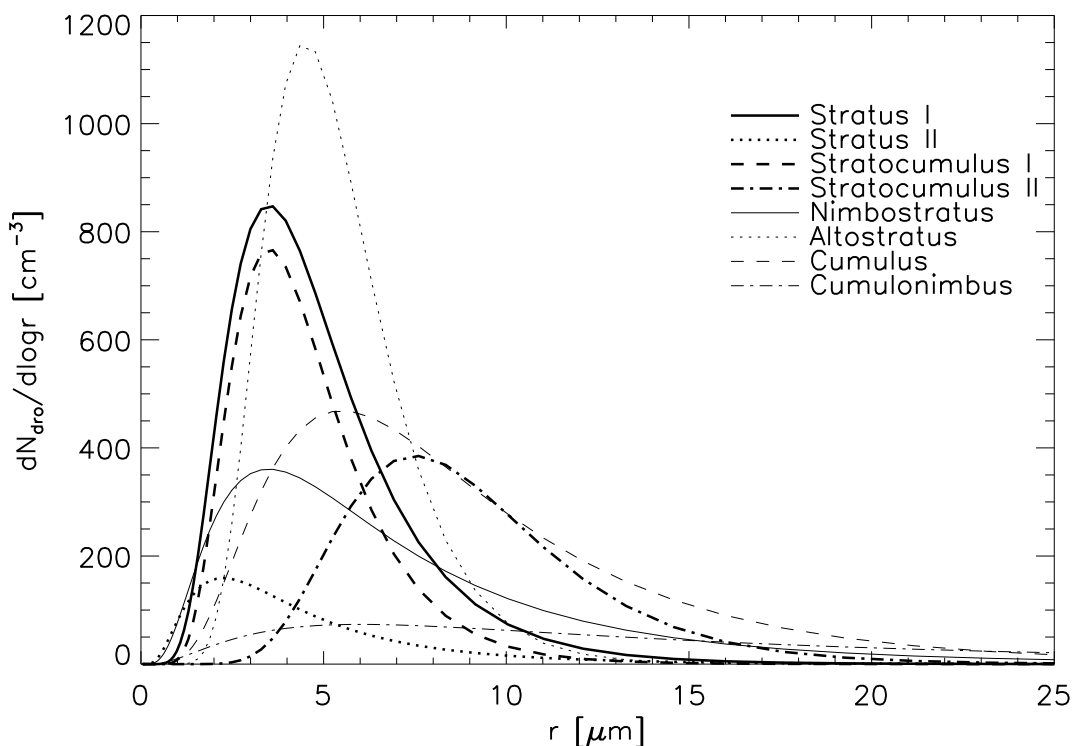


Abbildung 2.5: $dN_{\text{dro}}/d\log r$ für unterschiedliche Wolkentypen nach *Stephens* (1978).

bilden. Der Stratocumulus-Typ-II (dicke, strich-punktierte Linie) beschreibt dabei einen maritimen Wolkentyp mit größeren Tropfen als der Stratocumulus-Typ-I (dicke, gestrichelte Linie). Da die Wolketropfenanzahl sehr stark von der vorhandenen Anzahl von Kondensationskernen abhängig ist, haben i.A. Wolken, die über den Ozeanen entstehen, wo eine geringe Konzentration an Kondensationskernen vorliegt, eine niedrigere Tropfenanzahl mit entsprechend größerem Tropfenradius als Wolken, die in urban belasteten Luftmassen entstehen. Da in urbanen Regionen häufig ein größeres Angebot an Kondensationskernen zur Verfügung steht, kann sich das vorhandene Flüssigwasser auf mehrere Tropfen verteilen, was im Mittel einen geringeren Tropfenradius zur Folge hat. *Altostratus*-Wolken (dünne, gepunktete Linie) sind mittelhohe Schichtwolken, die sowohl Eiskristalle als auch Wassertropfen enthalten können. Sie bilden i.A. Niederschlag aus. *Nimbostratus*-Wolken (dünne, durchgezogene Linie) sind ebenfalls Niederschlag bildende Wolken von großer horizontaler und vertikaler Erstreckung. Ihre Wolkenbasis ist gewöhnlich in etwa 1000 m Höhe. Die Schönwetter *Cumulus*-Wolken (dünne, gestrichelte Linie), meist mit geringer vertikaler Ausdehnung, entstehen durch Konvektion. *Cumulonimbus*-Wolken (dünne,

strich-punktierte Linie) sind Cumulus-Wolken mit großer vertikaler Erstreckung. Die innerhalb der Wolkentropfen vorhandenen Kondensationskerne werden zur Bestimmung des Einflusses der Wolke auf das Strahlungsfeld vernachlässigt. Das führt zu der Annahme, dass Wolkentropfen aus reinem Wasser bestehen. Für den komplexen Brechungsindex der Wolkentropfen kann deshalb der komplexe Brechungsindex von reinem Wasser nach *Hale und Querry* (1973) verwendet werden. Diese Approximation ist in Übereinstimmung mit Ergebnissen von *Erlick et al.* (1998), welche darlegen, dass für eine interne Mischung von Wassertropfen und Aerosolpartikeln das Transmissionsspektrum sehr stark von den Wassertropfen dominiert wird, sofern sich kein unrealistisch hoher Anteil von stark absorbierendem Material innerhalb des Tropfens befindet.

Da die Tropfen in warmen Wolken, die keinen Niederschlag bilden, nahezu sphärisch sind, ist auch die Anwendung der Mie-Theorie zur Bestimmung der Strahlungseigenschaften der Wolkentropfen zulässig.

2.2.3 Die Strahlungseigenschaften der Mie-Partikel

Zur Bestimmung der Strahlungseigenschaften der Mie-Partikel werden die Extinktions- und Streuquerschnitte σ_{ext} und σ_{sca} aus Gl. (1.6) und Gl. (1.7) über die gesamte Größenverteilung $dN_i/d \log r$ integriert, wobei i entweder für Aerosolpartikel oder Wolkentropfen steht. Dadurch ergeben sich der Volumenextinktions- $\beta_{\text{ext},i}$ und Volumenstreuoeffizient $\beta_{\text{sca},i}$, in m^{-1} , der Aerosolpartikel bzw. Wolkentropfen in Abhängigkeit vom Brechungsindex n (*Lenoble und Brogniez*, 1984):

$$\beta_{\text{ext},i}(n) = \int_0^{\infty} \frac{dN_i}{d \log r} \sigma_{\text{ext}}(x, n) d \log r, \quad i = \text{aer, dro}, \quad (2.31)$$

$$\beta_{\text{sca},i}(n) = \int_0^{\infty} \frac{dN_i}{d \log r} \sigma_{\text{sca}}(x, n) d \log r. \quad (2.32)$$

Der Volumenabsorptionskoeffizient $\beta_{\text{abs},i}$ ergibt sich aus:

$$\beta_{\text{abs},i}(n) = \beta_{\text{ext},i}(n) - \beta_{\text{sca},i}(n). \quad (2.33)$$

Gl. (2.31) und Gl. (2.32) machen deutlich, dass der für die Streuung relevante Radiusbereich der Partikelverteilung durch das Produkt

$$\eta = \frac{dN_i}{d \log r} \cdot \sigma_{\text{sca}} \quad (2.34)$$

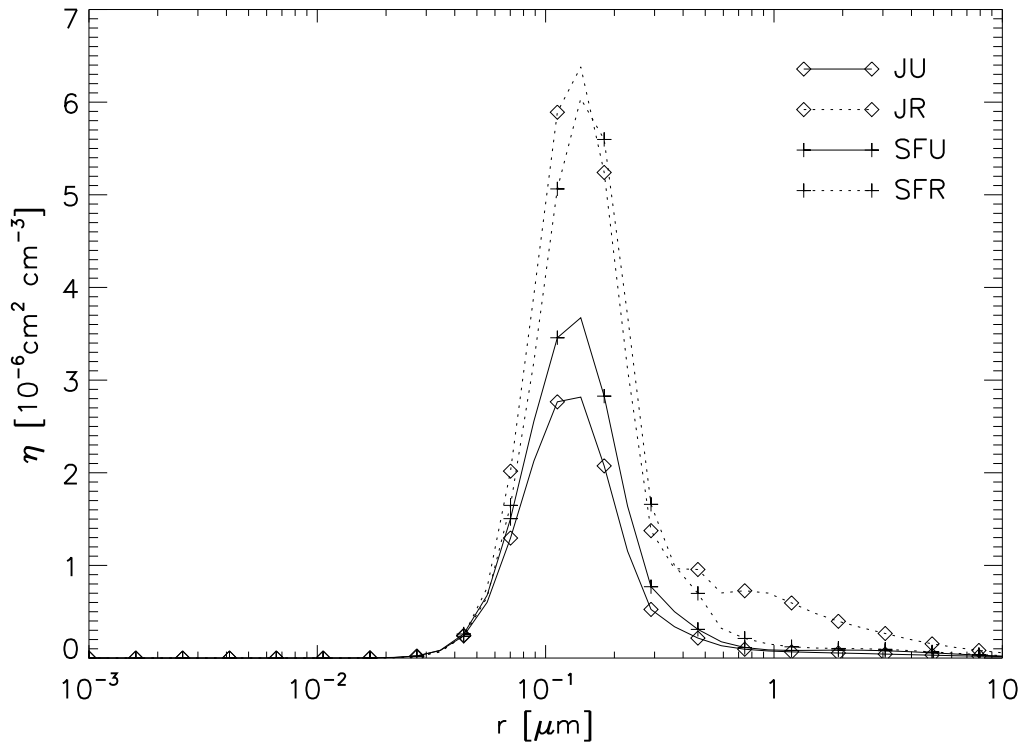


Abbildung 2.6: Anzahlgrößenverteilung am Boden gewichtet mit dem Streuquerschnitt η bei $\lambda = 292 \text{ nm}$ für die Aerosolverteilungen *JU*, *JR*, *SFU* und *SFR*.

bestimmt wird.

Abb. 2.6 zeigt dieses Produkt η für den Streuquerschnitt σ_{sca} bei $\lambda = 292 \text{ nm}$ in Abhängigkeit vom Partikelradius r für die Aerosolgrößenverteilungen *JU*, *JR*, *SFU* und *SFR*. Das Maximum von η liegt bei $\eta_{\text{max}} = 0,14 \mu\text{m}$. Da sich η_{max} mit zunehmender Wellenlänge zu größeren Radien verschiebt, bildet der in Abb. 2.6 dargestellte Wert für η_{max} die untere Grenze der η_{max} im relevanten Wellenlängenbereich. Daraus kann geschlossen werden, dass lediglich Teilchen mit einem Radius größer $0,04 \mu\text{m}$ für die Streuung relevant sind. Für Partikel kleiner $0,04 \mu\text{m}$ ist der Beitrag zum Integral Gl. (2.32) vernachlässigbar gering.

An Hand der in Abb. 2.6 dargestellten Größe η lassen sich auch die Unterschiede der einzelnen Aerosolverteilungen deutlich darstellen. Das maximale η bei der Verteilung *JR* hat den Wert $\eta_{\text{max}} = 6,38$. Bei der Verteilung *JU* beträgt $\eta_{\text{max}} = 2,82$. Das bedeutet, dass η_{max} bei der Verteilung *JR* im Vergleich zur Verteilung *JU* um den Faktor 2,3 erhöht ist. Bei der Verteilung *SFR* ist $\eta_{\text{max}} = 6,04$. Bei der Verteilung *SFU* dagegen beträgt $\eta_{\text{max}} = 3,67$. In diesem Fall ist η_{max} bei *SFR* um den Faktor

1.6 höher als bei *SFU*. Der Vergleich zwischen den beiden ruralen Verteilungen zeigt, dass η_{\max} der Verteilung *JR* um den Faktor 1.1 höher ist als η_{\max} der Verteilung *SFR*. Derselbe Vergleich für das urbane Aerosol zeigt, dass in diesem Fall η_{\max} berechnet mit der Größenverteilung *SFU* um den Faktor 1.3 größer ist als η_{\max} der Verteilung *JU*.

Für die ruralen Verteilungen *JR* und *SFR* ist η_{\max} in beiden Fällen größer als η_{\max} der beiden urbanen Verteilung *SFU* und *JU*.

Die große Abweichung der Aerosolanzahlkonzentration bei Radien kleiner $0.04 \mu\text{m}$ zwischen den beiden Verteilungen *JR* und *JU* und den Verteilungen *SFR* und *SFU*, welche in Abb. 2.2 deutlich hervortritt, sind für die Streueigenschaften der Partikel ohne Bedeutung.

Der Asymmetrieparameter g der Verteilung folgt analog zu Gl. (2.31) und Gl. (2.32) aus dem Asymmetrieparameter eines Einzelteilchens g_p in Gl. (1.16) durch Integration über die Größenverteilung, welche zusätzlich auf den Volumenstreuoeffizienten $\beta_{\text{sca},i}$ (*Lenoble und Brogniez, 1984*) bezogen wird:

$$g(n) = \frac{1}{\beta_{\text{sca},i}(n)} \int_0^{\infty} \frac{dN_i}{d \log r} g_p(x, n) \sigma_{\text{sca}}(x, n) d \log r. \quad (2.35)$$

Der Ansatz für die Phasenfunktion für die Streuung an Mie-Partikeln (*Lenoble, 1993*) ist die sogenannte Henyey-Greenstein-Phasenfunktion, welche lautet:

$$\mathcal{P}(\cos \Theta) = \frac{1 - g^2}{(1 + g^2 - 2g \cos \Theta)^{3/2}}. \quad (2.36)$$

Wiederum wird die Phasenfunktion in eine Legendre-Reihe entsprechend Gl. (2.2) entwickelt. Zur Bestimmung der Legendre-Koeffizienten wird nun Gl. (2.36) in Gl. (2.5) eingesetzt. Es folgt:

$$g p_i = \frac{2i + 1}{2} g (1 - g^2) \int_{-1}^1 (1 + g^2 - 2g \cos \Theta)^{-3/2} P_i(\cos \Theta) d \cos \Theta. \quad (2.37)$$

Das Ableiten der erzeugenden Funktion der Legendre-Polynome

$$\frac{1}{(1 + g^2 - 2g \cos \Theta)^{1/2}} = \sum_{j=0}^{\infty} g^j P_j(\cos \Theta) \quad (2.38)$$

nach $\cos \Theta$ führt zu:

$$\frac{g}{(1 + g^2 - 2g \cos \Theta)^{3/2}} = \sum_{j=0}^{\infty} g^j \frac{dP_j(\cos \Theta)}{d \cos \Theta}. \quad (2.39)$$

Gl. (2.39) wird in Gl. (2.37) eingesetzt. Es folgt:

$$g p_i = \frac{2i+1}{2}(1-g^2) \sum_{j=0}^{\infty} g^j \int_{-1}^1 \frac{dP_j(\cos \Theta)}{d \cos \Theta} P_i(\cos \Theta) d \cos \Theta. \quad (2.40)$$

Die Rekursionsformel

$$\frac{d}{dx} P_{i+1}(x) = (2i+1)P_i(x) + \frac{d}{dx} P_{i-1}(x) \quad (2.41)$$

bewirkt, zusammen mit der Orthogonalitätsrelation, dass die Summation in Gl. (2.40) lediglich über gerade $j \leq i$ gebildet werden muss, d.h.

$$g p_i = (2i+1)(1-g^2)g^{i+1} \sum_{j=0}^i g^{2j}. \quad (2.42)$$

Für die Legendre-Koeffizienten folgt dadurch:

$$p_i = (2i+1)g^i. \quad (2.43)$$

Die daraus resultierende Phasenfunktion lautet:

$$\mathcal{P}(\cos \Theta) = \sum_{i=0}^{\infty} (2i+1)g^i P_i(\cos \Theta) \quad (2.44)$$

und stellt die Reihendarstellung der Henyey-Greenstein-Phasenfunktion dar.

Die in die Vorwärtsrichtung gestreute Strahlung wird von der Henyey-Greenstein-Phasenfunktion im Vergleich zur Mie-Phasenfunktion unterschätzt. Für Streumuster mit nicht starker Vorwärtsstreuung ist die Approximation der Phasenfunktion durch die Henyey-Greenstein-Funktion ausreichend (*Liou, 1992*).

Die starke Vorwärtsstreuung der großen Partikel wird deshalb in vielen Strahlungstransportmodellen durch die Einführung einer Diracschen δ -Funktion (*Joseph et al., 1976*) berücksichtigt. Der Ansatz für die Phasenfunktion lautet damit:

$$\mathcal{P}(\cos \Theta) = 2f \delta(\vec{\Omega} - \vec{\Omega}') + (1-f)\mathcal{P}^*(\cos \Theta) \quad (2.45)$$

und wird als δ -Eddington-Approximation bezeichnet. Der prozentuale Energieanteil in Vorwärtsrichtung wird durch den Parameter f beschrieben. Für $\mathcal{P}^*(\tau, \mu, \mu')$ wird der üblichen Ansatz für die Phasenfunktion in Gl. (2.2) entwickelt:

$$\mathcal{P}^*(\cos \Theta) = \sum_{i=0}^{\infty} p_i^* P_i(\cos \Theta). \quad (2.46)$$

Diese δ -Skalierung führt zu einer signifikanten Verbesserung der Strahlungsflussrechnungen (*Liou et al., 1988*) im Vergleich zur Verwendung der ursprünglichen Henyey-Greenstein-Phasenfunktion.

2.3 Die Strahlungseigenschaften aller Extingenten

Die in den Abschnitten 2.1 und 2.2 abgeleiteten Strahlungseigenschaften der Luftmoleküle und Mie-Partikel müssen zusammengefasst werden, um die Strahlungseigenschaften der gesamten Atmosphäre zu erhalten.

Zur Bestimmung des Extinktionskoeffizienten der Atmosphäre β_{ext} werden der Streukoeffizient der Rayleigh-Streuung β_{ray} in Gl. (2.1), der Absorptionskoeffizient von Ozon β_{O_3} in Gl. (2.8), der Absorptionskoeffizient von Stickstoffdioxid β_{NO_2} in Gl. (2.9), der Extinktionskoeffizient der Aerosolpartikel $\beta_{\text{ext,aer}}$ und der Extinktionskoeffizient der Wolkentropfen $\beta_{\text{ext,dro}}$ in Gl. (2.31) addiert:

$$\beta_{\text{ext}} = \beta_{\text{ray}} + \beta_{\text{O}_3} + \beta_{\text{NO}_2} + \beta_{\text{ext,aer}} + \beta_{\text{ext,dro}}. \quad (2.47)$$

Die optische Dicke τ als Funktion der Höhe z ist über

$$\tau(z) = \int_z^{\infty} \beta_{\text{ext}}(z') dz' \quad (2.48)$$

definiert. Zur Bestimmung der optischen Dicke der einzelnen Extingenten, also der optischen Dicke der Rayleigh-Streuung τ_{ray} , der Ozonabsorption τ_{O_3} , der NO_2 -Absorption τ_{NO_2} , des Aerosols τ_{aer} und der Wolken τ_{wol} wird der Extinktionskoeffizient β_{ext} in Gl. (2.48) durch die Extinktionskoeffizienten β_{ray} , β_{O_3} , β_{NO_2} , $\beta_{\text{ext,aer}}$ und $\beta_{\text{ext,dro}}$ der einzelnen Extingenten ersetzt.

Die Bestimmung der Einfachstreueralbedo der Atmosphäre erfolgt durch die Summation der Streukoeffizienten im Zähler und die Summation der Extinktionskoeffizienten im Nenner, welche bereits in Gl. (2.47) durchgeführt wurde. Somit ergibt sich:

$$\tilde{\omega} = \frac{\beta_{\text{ray}} + \beta_{\text{sca,aer}} + \beta_{\text{sca,dro}}}{\beta_{\text{ext}}}. \quad (2.49)$$

Die atmosphärischen Legendre-Koeffizienten berechnen sich aus der Summe der Legendre-Koeffizienten der einzelnen Komponenten gewichtet mit dem entsprechenden Streukoeffizienten:

$$p_i = \frac{\beta_{\text{ray}} p_{\text{ray},i} + \beta_{\text{sca,aer}} p_{\text{aer},i} + \beta_{\text{sca,dro}} p_{\text{dro},i}}{\beta_{\text{ray}} + \beta_{\text{sca,aer}} + \beta_{\text{sca,dro}}}. \quad (2.50)$$

Damit sind die zur Lösung der Strahlungstransportgleichung Gl. (1.42) benötigten Parameter: der Extinktionskoeffizient β_{ext} , die Einfachstreueralbedo $\tilde{\omega}$ und die Legendre-Koeffizienten p_i , welche zur Bestimmung der Phasenfunktion entsprechend Gl. (2.2) benötigt werden, zur Verfügung gestellt.

Kapitel 3

Strahlungstransportmodelle

Ziel dieser Arbeit ist die Bestimmung des aktinischen Flusses im photochemisch relevanten Spektralbereich bis 850 nm. Dazu ist zunächst die Bestimmung der Strahldichte über Gl. (1.42) notwendig. Da die Strahldichte der terrestrischen Strahlung im relevanten Spektralbereich sehr viel geringer ist als die der solaren Strahlung (vgl. Abb. 1.2) wird die Temperaturstrahlung bei den folgenden Untersuchungen vernachlässigt. Die stationäre Strahlungstransportgleichung vereinfacht sich dadurch auf:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\beta_{\text{ext}}} \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu) &= -L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu) \\ &+ \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \oint_{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}', \nu) L(\vec{r}, \vec{\Omega}', \nu) d\Omega' \\ &+ \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}_0, \nu) S_0 e^{-\tau_s}. \end{aligned} \quad (3.1)$$

Die Komponenten des Raumwinkels $\vec{\Omega}$ sind der Zenitwinkel ϑ und der Azimutwinkel φ . Die Definition dieser Winkel entspricht denen der Kugelkoordinaten, Der Zenitwinkel ϑ beschreibt die Auslenkung zum Zenit. ϑ ist 0° im Zenit und 90° am Horizont. Der Azimutwinkel φ ist in der östlichen Hemisphäre positiv und in der westlichen Hemisphäre negativ (vgl. Abb. 3.1). φ ist im Süden 0° und im Norden 180° . Abb. 3.1 stellt die Komponenten ϑ_0 und φ_0 des solaren Einstrahlwinkels $\vec{\Omega}_0$ graphisch dar.

Bei der Diskretisierung der Atmosphäre auf das kartesische Gitter, auf welchem die Strahlungstransportgleichung gelöst wird, wird bei den hier verwendeten Verfahren die Krümmung der Erdatmosphäre vernachlässigt. Diese Annahme einer

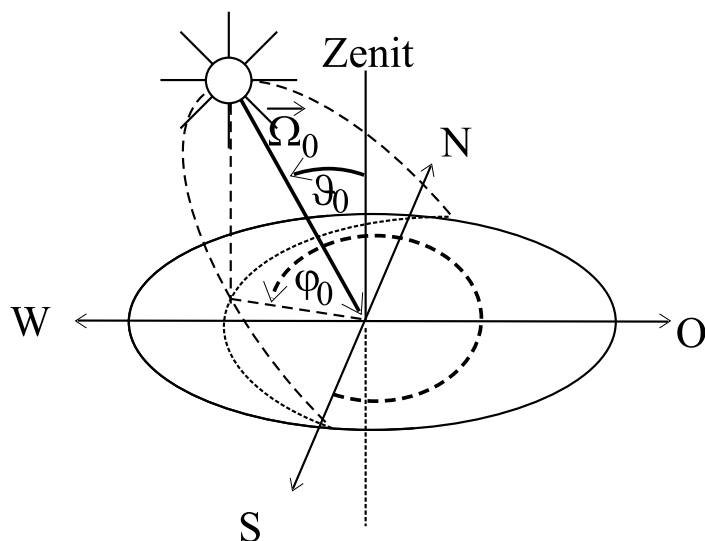


Abbildung 3.1: Skizze zur Definition des Sonnenzenitwinkels ϑ_0 und des Sonnenazimutwinkels φ_0 .

plan-parallelen Atmosphäre ist für hinreichend kleine, horizontale Ausdehnungen des Modellgebietes und Sonnenzenitwinkel kleiner 75° zulässig (Lenoble, 1993; Dahlback und Stamnes, 1991).

Das kartesische Gitter kann 1-, 2- oder 3-dimensional sein. Die Strahlungsparameter aus Gl. (2.47), Gl. (2.49) und Gl. (2.50) müssen für jede Gitterbox bestimmt werden, auf der die Strahlungstransportgleichung zu lösen ist. Verwendet man ein 1-dimensionales Gitter, so muss horizontale Homogenität der Atmosphäre angenommen werden. Inhomogenitäten in vertikaler Richtung sind jedoch zulässig. Das bedeutet, dass der Strahlungstransport lediglich für Situationen bestimmt werden kann, in denen entweder keine Wolken vorhanden sind, oder diese eine ausreichend große Ausdehnung haben, so dass man unendliche Ausdehnung annehmen kann. Randeffekte an Wolken können damit nicht bestimmt werden. Der Vorteil der 1-dimensionalen Strahlungstransportmodelle ist der numerisch geringere Aufwand im Vergleich zu 2- oder 3-dimensionalen Modellen.

Zur Lösung der Strahlungstransportgleichung für den diffusen Anteil der Strahlung in Gl. (3.1) sind Randbedingungen notwendig. Für die obere Randbedingung wird angenommen, dass die nach unten gerichtete diffuse Strahlung am Oberrand der Atmosphäre verschwindet. Dadurch fällt am Oberrand der Atmosphäre nur direkte

Strahlung ein. Die untere Randbedingung ist durch das Reflektionsverhalten der Erdoberfläche definiert. In den verwendeten Strahlungstransportmodellen wird angenommen, dass die Reflektivitätsfunktion winkelunabhängig ist. Die Erdoberfläche ist somit näherungsweise ein Lambertscher Reflektor und kann mit der spektralen Bodenalbedo beschrieben werden. Die Bodenalbedo beschreibt den Anteil der zurückgestreuten Strahlung, d.h. also das Verhältnis zwischen nach oben gerichteter diffuser Strahlung zur nach unten gerichteten direkten und diffusen Strahlung. In den 2- und 3-dimensionalen Strahlungstransportmodellen sind zusätzlich seitliche Randbedingungen notwendig.

In Abschnitt 3.1 werden drei verschiedene Verfahren zur Lösung der 1-dimensionalen Strahlungstransportgleichung vorgestellt. Das δ -Zwei-Strom-Verfahren spaltet das Strahlungsfeld in zwei Gleichungen auf. Dabei beschreibt eine Gleichung die Strahlungsflussdichte in den oberen und die andere Gleichung die Strahlungsflussdichte in den unteren Halbraum. Eine weitere Methode zur Bestimmung des 1-dimensionalen Strahlungstransportfeldes bietet das Diskrete-Ordinaten-Verfahren. Auch hier wird das Strahlungsfeld in diskrete Ströme aufgeteilt. Durch die Möglichkeit mehr als zwei Ströme zu verwenden, steigt die Genauigkeit des Verfahrens. Für das δ -Vier-Strom-Verfahren wird die Lösungsmethode des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens verwendet, wobei jedoch die Anzahl der diskreten Ströme auf vier beschränkt ist.

Sofern man an Randeffekten von Wolken interessiert ist, oder auch an der Beeinflussung zweier Wolken untereinander, so besteht die Notwendigkeit, 2- oder 3-dimensionale Strahlungstransportmodelle zu verwenden. In Abschnitt 3.2 wird die Lösungsmethode des 3-dimensionalen Strahlungstransportmodells SHDOM skizziert.

3.1 Die 1-dimensionale Lösung

Zur Lösung der Strahlungstransportgleichung in Gl. (3.1) in einer horizontal homogenen, plan-parallelen Atmosphäre genügt die Lösung der 1-dimensionalen Strahlungstransportgleichung. Dabei werden lediglich die Inhomogenitäten der Atmosphäre in vertikaler Richtung berücksichtigt.

Mit der optischen Dicke aus Gl. (2.48) ergibt sich für die stationäre Strahlungstrans-

portgleichung (Gl. (3.1)):

$$\begin{aligned} \mu \frac{dL(\tau, \mu, \varphi, \nu)}{d\tau} = L(\tau, \mu, \varphi, \nu) & - \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^1 \mathcal{P}(\tau, \mu, \varphi, \mu', \varphi', \nu) L(\tau, \mu', \varphi', \nu) d\mu' d\varphi' \\ & - \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \mathcal{P}(\tau, \mu, \varphi, -\mu_0, \varphi_0, \nu) S_0 e^{-\tau/\mu_0}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

3.1.1 Das δ -Zwei-Strom-Verfahren (PIFM)

Die „Practical Improved Flux Method (PIFM)“ (*Zdunkowski et al.*, 1980, 1982) spaltet die Strahlungstransportgleichung unter Annahme eines azimutalsymmetrischen Strahlungsfeldes in zwei Terme auf, welche den Strahlungstransport in den oberen bzw. unteren Halbraum beschreiben.

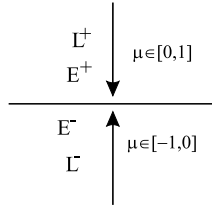


Abbildung 3.2: Skizze zur Illustration der Aufteilung der Strahlungsflussdichten in den oberen bzw. unteren Halbraum.

Abb. 3.2 illustriert diese Aufspaltung. Der Definitionsbereich der Variablen μ wird dabei in der Gleichung für den Strahlungstransport nach oben (Strahldichte L^-) auf das Intervall zwischen -1 und 0 eingeschränkt. Der Definitionsbereich in der Gleichung für den Strahlungstransport nach unten (Strahldichte L^+) dagegen wird auf das Intervall zwischen 0 und 1 beschränkt. Die Azimutalsymmetrie erlaubt die Vereinfachung der funktionalen Zusammenhänge $L(\tau, \mu, \varphi, \nu)$ auf $L(\tau, \mu, \nu)$ und $\mathcal{P}(\mu, \varphi, \hat{\mu}, \hat{\varphi}, \nu)$ auf $\mathcal{P}(\mu, \hat{\mu}, \nu)$ mit $\hat{\mu} = \mu'$ bzw. μ_0 . Nun definiert man:

$$L^+(\tau, \mu, \nu) := L(\tau, +|\mu|, \nu)$$

$$L^-(\tau, \mu, \nu) := L(\tau, -|\mu|, \nu)$$

und

$$\mathcal{P}^+(\tau, \mu, \mu', \nu) := \mathcal{P}(\tau, \mu, \mu', \nu) = \mathcal{P}(\tau, -\mu, -\mu', \nu)$$

$$\mathcal{P}^-(\tau, \mu, \mu', \nu) := \mathcal{P}(\tau, -\mu, \mu', \nu) = \mathcal{P}(\tau, \mu, -\mu', \nu).$$

Die Identitäten der letzten beiden Gleichungen gelten, wenn für die Phasenfunktion der Ansatz der Reihenentwicklung in Legendre-Polynome vorgenommen wird, da für die Legendre-Polynome $P_l(x) = (-1)^l P_l(-x)$ gilt. Mit diesen Definitionen lautet die Gleichung für das nach unten gerichtete Strahlungsfeld L^+ :

$$\begin{aligned} \mu \frac{dL^+(\tau, \mu, \nu)}{d\tau} &= L^+(\tau, \mu, \nu) - \frac{\tilde{\omega}}{2} \int_0^1 \mathcal{P}^+(\tau, \mu, \mu', \nu) L^+(\tau, \mu', \nu) d\mu' \\ &\quad - \frac{\tilde{\omega}}{2} \int_0^1 \mathcal{P}^-(\tau, \mu, \mu', \nu) L^-(\tau, \mu', \nu) d\mu' \\ &\quad - \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \mathcal{P}^-(\tau, \mu, \mu_0, \nu) S_0 e^{-\tau/\mu_0}. \end{aligned} \quad (3.3)$$

In der Gleichung für das nach oben gerichtete Strahlungsfeld L^- bewirkt das Ersetzen von μ durch $-|\mu|$ die Veränderung des Definitionsbereichs auf $\mu \in [0,1]$:

$$\begin{aligned} \mu \frac{dL^-(\tau, \mu, \nu)}{d\tau} &= -L^-(\tau, \mu, \nu) + \frac{\tilde{\omega}}{2} \int_0^1 \mathcal{P}^-(\tau, \mu, \mu', \nu) L^+(\tau, \mu', \nu) d\mu' \\ &\quad + \frac{\tilde{\omega}}{2} \int_0^1 \mathcal{P}^+(\tau, \mu, \mu', \nu) L^-(\tau, \mu', \nu) d\mu' \\ &\quad + \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \mathcal{P}^+(\tau, \mu, \mu_0, \nu) S_0 e^{-\tau/\mu_0}. \end{aligned} \quad (3.4)$$

Sowohl in Gl. (3.3) als auch in Gl. (3.4) ist nun der Definitionsbereich der Variablen $\mu \in [0,1]$.

Aus Gl. (3.3) und Gl. (3.4) für die Strahldichten wird nun eine Gleichung für die nach oben bzw. unten gerichtete Strahlungsflussdichte abgeleitet. Für die azimutalsymmetrische Strahldichte ist die Strahlungsflussdichte definiert als:

$$E^\pm(\tau, \nu) = 2\pi \int_0^1 \mu L^\pm(\tau, \mu, \nu) d\mu. \quad (3.5)$$

Auf Gl. (3.3) und Gl. (3.4) wird deshalb der Operator $2\pi \int_0^1 \dots d\mu$ angewendet. Daraus ergibt sich:

$$\begin{aligned}
\frac{dE^\pm(\tau, \nu)}{d\tau} &= \pm 2\pi \int_0^1 L^\pm(\tau, \mu, \nu) d\mu \mp \tilde{\omega} \pi \int_0^1 d\mu \int_0^1 \mathcal{P}^\pm(\tau, \mu, \mu', \nu) L^\pm(\tau, \mu', \nu) d\mu' \\
&\mp \tilde{\omega} \pi \int_0^1 d\mu \int_0^1 \mathcal{P}^\mp(\tau, \mu, \mu', \nu) L^\mp(\tau, \mu', \nu) d\mu' \\
&\mp \frac{\tilde{\omega}}{2} \int_0^1 d\mu \mathcal{P}^\mp(\tau, \mu, \mu_0, \nu) S_0 e^{-\tau/\mu_0}. \quad (3.6)
\end{aligned}$$

Eine mit der Strahldichte $L^\pm(\tau, \mu)$ gewichtete Mittelwertbildung über den Halbraum für den Zenitwinkel μ und die Phasenfunktion \mathcal{P} führt zu:

$$\begin{aligned}
\frac{dE^+(\tau, \nu)}{d\tau} &= \\
&\frac{1}{\bar{\mu}} (1 - \tilde{\omega}(1 - b)) E^+(\tau, \nu) - \frac{1}{\bar{\mu}} \tilde{\omega} b E^-(\tau, \nu) - \tilde{\omega} b_0 S_0 e^{-\tau/\mu_0} \\
\frac{dE^-(\tau, \nu)}{d\tau} &= \\
&\frac{1}{\bar{\mu}} \tilde{\omega} b E^+(\tau, \nu) - \frac{1}{\bar{\mu}} (1 - \tilde{\omega}(1 - b)) E^-(\tau, \nu) + \tilde{\omega}(1 - b_0) S_0 e^{-\tau/\mu_0}, \quad (3.7)
\end{aligned}$$

mit

$$b = \frac{1}{2} \int_0^1 \int_0^1 \mathcal{P}(\tau, -\mu, \mu', \nu) d\mu' d\mu \quad (3.8)$$

$$b_0 = \frac{1}{2} \int_0^1 \mathcal{P}(\tau, \mu, -\mu_0, \nu) d\mu \quad (3.9)$$

$$\bar{\mu} = \int_0^1 \mu d\mu. \quad (3.10)$$

Für die Phasenfunktion wird die δ -Eddington-Approximation in Gl. (2.45) verwendet. Dieser Ansatz für die Phasenfunktion wird nun zur Bestimmung des Parameters b in Gl. (3.8) eingesetzt. Dadurch ergibt sich für b :

$$b = \frac{1-f}{2} \left(p_0^* - \frac{p_1^*}{4} \right). \quad (3.11)$$

Zur Bestimmung der Legendre-Koeffizienten p_i^* wird die linke Seite der Gl. (2.45) in eine Reihe entsprechend Gl. (2.2) entwickelt. Wendet man nun den Operator $\int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \dots P_i(\mu) P_i(\mu') d\mu d\mu'$ auf Gl. (2.45) an, so ergeben sich unter Ausnutzung der Orthogonalitätsrelation der Legendre-Polynome die Legendre-Koeffizienten der δ -

Eddington-Approximation wie folgt:

$$p_i = (2i + 1) f + (1 - f) p_i^*. \quad (3.12)$$

Da $p_0 = 1$ (vgl. Abschnitt 2.1) folgt auch $p_0^* = 1$. Für p_1^* ergibt sich:

$$p_1^* = \frac{p_1 - 3f}{1 - f}. \quad (3.13)$$

Eingesetzt in Gl. (3.11) führt das zu:

$$b = \frac{4 - p_1 - f}{8}. \quad (3.14)$$

Für b_0 folgt analog

$$b_0 = (1 - f) \left(\frac{1}{2} + \frac{\mu_0}{4} \frac{3f - p_1}{1 - f} \right). \quad (3.15)$$

In PIFM wird nun $f = (p_1/3)^2$ gesetzt, wobei p_1 aus der Henyey-Greenstein-Approximation (vgl. Abschnitt 2.2.3) resultiert. Für $1/\bar{\mu}$ wird der Wert 2 verwendet, was einem mittleren Zenitwinkel von 60° entspricht.

Der Vorteil des δ -Zwei-Strom-Verfahrens liegt in der analytischen Bestimmung der aufwärts- und abwärtsgerichteten Flüsse. Dadurch ist das Verfahren schnell bezüglich der Rechenzeit.

3.1.2 Das Diskrete-Ordinaten-Verfahren

Auch bei dem Diskrete-Ordinaten-Verfahren (*Stamnes et al.*, 1988) wird das Strahlungsfeld in diskrete Ströme aufgeteilt. Die Anzahl der Ströme, in welche das Strahlungsfeld aufgeteilt wird, ist jedoch variabel. Durch die Erhöhung der Anzahl von Strömen kann eine größere Genauigkeit der resultierenden Strahldichte erzielt werden, da die Winkelabhängigkeit der Strahldichte dadurch besser beschrieben wird. Die Erhöhung der Anzahl der Ströme verursacht jedoch eine höhere Rechenzeit und benötigt größere Speicherplatzkapazitäten.

Zunächst werden in Gl. (3.2) die Winkelvariablen μ und φ durch Reihenentwicklung separiert. Die Strahldichte L wird in eine Fourier-Kosinusreihe entwickelt:

$$L(\tau, \mu, \varphi) = \sum_{m=0}^{2N-1} L^m(\tau, \mu) \cos(m(\varphi - \varphi_0)). \quad (3.16)$$

L^m ist dabei der Fourier-Koeffizient der Strahldichte L , welcher nicht mehr vom Azimutwinkel φ , sondern lediglich vom Zenitwinkel μ abhängig ist. Die Anzahl der

Entwicklungsterme $2N$ ist von der Anisotropie des zu beschreibenden Streuprozesses abhängig und entspricht der Anzahl an Strömen, in welche das Strahlungsfeld aufgespalten wird. Für die über den Azimutwinkel φ integrierten Flüsse, wie die Strahlungsflussdichte und den aktinischen Fluss, liefert nur die erste Komponente in Gl. (3.16) $L^0(\tau, \mu)$ einen Beitrag, da bei der Integration über den Azimutwinkel $\int_0^{2\pi} \cos(m(\varphi - \varphi_0)) d\varphi$ alle übrigen Terme $m \neq 0$ verschwinden.

Die Phasenfunktion wird entsprechend Gl. (2.2) entwickelt. Die Vollständigkeitsrelation der Legendre-Polynome erlaubt die Separation der Zenitwinkelvariablen unter Verwendung der zugeordneten Legendre-Funktionen P_l^m und der Definition des Streuwinkels in Gl. (1.11):

$$P_n(\cos \Theta) = \sum_{m=0}^{2N-1} (2 - \delta_{0,m}) \frac{(n-m)!}{(n+m)!} P_n^m(\mu) P_n^m(\mu') \cos(m(\varphi - \varphi')). \quad (3.17)$$

Zusammengefasst erhält man für die Phasenfunktion:

$$\mathcal{P}(\cos \Theta) = \sum_{m=0}^{2N-1} (2 - \delta_{0,m}) \sum_{n=m}^{2N-1} p_n \frac{(n-m)!}{(n+m)!} P_n^m(\mu) P_n^m(\mu') \cos(m(\varphi - \varphi')). \quad (3.18)$$

Nach Einsetzen der Gl. (3.16) und Gl. (3.18) in Gl. (3.2) und Anwendung des Operators $\int_0^{2\pi} \dots \cos(l(\varphi - \varphi_0)) d\varphi$, welcher die Azimutalsymmetrie der horizontal homogenen Strahlungstransportgleichung ausnutzt, entsteht für jede Fourierkomponente $m = 0, 1, \dots, 2N-1$ eine Gleichung der Art:

$$\begin{aligned} \mu \frac{dL^m(\tau, \mu)}{d\tau} &= L^m(\tau, \mu) \\ &- \frac{\tilde{\omega}}{2} \int_{-1}^{+1} L^m(\tau, \mu') \sum_{n=m}^{2N-1} p_n^m P_n^m(\mu) P_n^m(\mu') d\mu' \\ &- \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} (2 - \delta_{0,m}) S_0 e^{-\tau/\mu_0} \sum_{n=m}^{2N-1} p_n^m P_n^m(\mu) P_n^m(-\mu_0), \end{aligned} \quad (3.19)$$

mit

$$p_n^m = p_n \frac{(n-m)!}{(n+m)!} \quad (3.20)$$

und

$$P_n^m(-\mu_0) = (-1)^{n+m} P_n^m(\mu_0). \quad (3.21)$$

Jede dieser $2N$ linear unabhängigen Gleichungen wird im Folgenden in $2N$ diskrete Ströme μ_i , $i = \pm 1, \dots, \pm N$, mit $\mu_{-i} = -\mu_i$, aufgespalten.

Das Integral in Gl. (3.19) wird mittels der Gauß-Quadratur in eine Reihe entwickelt.

Die Stützpunkte μ_j und Gewichtsfunktionen R_j der Doppel-Gauß-Quadratur, welche hier verwendet wurde, erfüllen $\mu_{-j} = -\mu_j$ und $R_{-j} = R_j$. Bei diesem Doppel-Gauß-Schema werden die beiden Gebiete $-1 < \mu < 0$ und $0 < \mu < 1$ getrennt behandelt. Der größte Vorteil dabei ist, dass die Quadraturpunkte (in gerader Ordnung) symmetrisch um $|\mu| = 0.5$ verteilt sind und sich gegen $|\mu| = 1$ und $|\mu| = 0$ häufen. Ohne die Halbierung des Intervalls für die Gauß-Quadratur lägen die Häufungspunkte lediglich um $\mu = \pm 1$. Die Häufung um Null liefert jedoch bessere Ergebnisse, da die Intensität um $\mu = 0$ stark variiert. Außerdem können dadurch die auf- und abwärtsgerichteten Flüsse und die mittlere Strahldichte ohne weitere Annahmen direkt bestimmt werden. Die Strahlungstransportgleichung lautet damit:

$$\begin{aligned} \mu_i \frac{dL^m(\tau, \mu_i)}{d\tau} &= L^m(\tau, \mu_i) \\ &- \frac{\tilde{\omega}}{2} \sum_{\substack{j=-N \\ j \neq 0}}^N L^m(\tau, \mu_j) \sum_{n=m}^{2N-1} p_n^m P_n^m(\mu_i) P_n^m(\mu_j) R_j \\ &- \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} (2 - \delta_{0,m}) S_0 e^{-\tau/\mu_0} \sum_{n=m}^{2N-1} (-1)^{n+m} p_n^m P_n^m(\mu_i) P_n^m(\mu_0). \end{aligned} \quad (3.22)$$

Da sowohl die Einfachstreueralbedo $\tilde{\omega}$ als auch die Phasenfunktion \mathcal{P} Funktionen der optischen Dicke τ in einem vertikal inhomogenen Medium sind, sind die Koeffizienten des Differentialgleichungssystems Gl. (3.22) variabel. Damit ist das Differentialgleichungssystem Gl. (3.22) nicht analytisch lösbar. Nur unter der Annahme, dass die Atmosphäre aus K homogenen, übereinanderliegenden Schichten aufgebaut ist, in denen jeweils die Einfachstreueralbedo und die Phasenfunktion konstant sind, ist das Gleichungssystem analytisch lösbar. Im Weiteren werden nur die Gleichungen einer homogenen Schicht betrachtet. Führt man die folgenden Abkürzungen ein:

$$\begin{aligned} \mathbf{L}^\pm &= [L^m(\tau, \pm\mu_i)], \quad \mathbf{L}^\pm \in \mathbb{R}^N \\ \mathbf{Q}^\pm &= [Q^m(\tau, \pm\mu_i)], \quad \mathbf{Q}^\pm \in \mathbb{R}^N \\ \mathbf{ID}^+ &= [D^m(\mu_i, \mu_j)] = [D^m(-\mu_i, -\mu_j)], \quad \mathbf{ID}^+ \in \mathbb{R}^{N \times N} \\ \mathbf{ID}^- &= [D^m(-\mu_i, \mu_j)] = [D^m(\mu_i, -\mu_j)], \quad \mathbf{ID}^- \in \mathbb{R}^{N \times N} \\ \mathbf{IM} &= [\mu_i \delta_{ij}], \quad \mathbf{IM} \in \mathbb{R}^{N \times N} \\ \mathbf{IR} &= [R_j \delta_{ij}], \quad \mathbf{IR} \in \mathbb{R}^{N \times N} \end{aligned} \quad (3.23)$$

mit

$$Q^m(\tau, \pm\mu_i) = Q_i = \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} (2 - \delta_{0,m}) S_0 e^{-\tau/\mu_0} \sum_{n=m}^{2N-1} (-1)^{n+m} p_n^m P_n^m(\mu_i) P_n^m(\mu_0)$$

$$D^m(\mu_i, \mu_j) = d_{i,j} = \frac{\tilde{\omega}}{2} \sum_{n=m}^{2N-1} p_n^m P_n^m(\mu_i) P_n^m(\mu_j), \quad (3.24)$$

so ergibt sich

$$\frac{d}{d\tau} \begin{pmatrix} \mathbf{L}^+ \\ \mathbf{L}^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\alpha & -\beta \\ \beta & \alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{L}^+ \\ \mathbf{L}^- \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} -\mathbf{I}\mathbf{M}^{-1}\mathbf{Q}^+ \\ \mathbf{I}\mathbf{M}^{-1}\mathbf{Q}^- \end{pmatrix} \quad (3.25)$$

mit

$$\begin{aligned} \alpha &= -\mathbf{I}\mathbf{M}^{-1} + \mathbf{I}\mathbf{M}^{-1}\mathbf{R}\mathbf{D}^+, & \alpha &\in \mathbb{R}^{N \times N} \\ \beta &= \mathbf{I}\mathbf{M}^{-1}\mathbf{D}^-, & \beta &\in \mathbb{R}^{N \times N}. \end{aligned}$$

Für jede Schicht $l = 1, \dots, K$ und jede Fourierkomponente der Strahldichte L^m , $m = 0, \dots, 2N-1$, ist das Gleichungssystem (3.25) zu lösen. Dieses System $2N$ gewöhnlicher linearer Differentialgleichungen mit konstanten Koeffizienten ist über die Ströme $L(\tau, \pm\mu_i)$, $i = 1, \dots, N$, gekoppelt.

Der Ansatz $\mathbf{L}^\pm = \mathbf{G}^\pm \exp\{-k\tau\}$, $\mathbf{G}^\pm \in \mathbb{R}^N$, führt zu dem Eigenwertproblem:

$$\begin{pmatrix} \alpha & \beta \\ -\beta & -\alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{G}^+ \\ \mathbf{G}^- \end{pmatrix} = k \begin{pmatrix} \mathbf{G}^+ \\ \mathbf{G}^- \end{pmatrix} \quad (3.26)$$

mit den Eigenwerten k und den Eigenvektoren \mathbf{G}^\pm . Wegen der speziellen Struktur der Matrizen treten die Eigenwerte in Paaren auf. Dadurch kann die Ordnung des algebraischen Eigenwertproblems um den Faktor 2 reduziert werden und somit die Rechenzeit des numerischen Lösungsverfahrens gekürzt werden.

Durch die analytische Entwicklung der Strahlungstransportgleichung bis zum Eigenwertproblem in Gl. (3.26) kann das Diskrete-Ordinaten-Verfahren bei hinreichend hoher Anzahl von diskreten Strömen als exaktes Verfahren angesehen werden.

3.1.3 Das δ -Vier-Strom-Verfahren

Das δ -Vier-Strom-Verfahren (Liou *et al.*, 1988) basiert auf der allgemeinen Lösung der Strahlungstransportgleichung mittels des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens. Die variable Anzahl von Strömen im Diskrete-Ordinaten-Verfahren wird jedoch auf vier festgesetzt. Es werden jeweils zwei Ströme in den oberen bzw. unteren Halbraum betrachtet, so dass sich das Differentialgleichungssystem (3.25) auf vier Gleichungen reduziert. Unter Verwendung der abkürzenden Bezeichnung $c_{i,j} = \mu_i^{-1} R_j d_{i,j}$ und den Definitionen aus den Gl. (3.23) und Gl. (3.24) ergibt sich für das Gleichungssystem:

$$\frac{d}{d\tau} \begin{pmatrix} L_{-2} \\ L_{-1} \\ L_1 \\ L_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (c_{2,2} - 1) & c_{2,1} & c_{2,-1} & c_{2,-2} \\ c_{1,2} & (c_{1,1} - 1) & c_{1,-1} & c_{1,-2} \\ -c_{1,-2} & -c_{1,-1} & -(c_{1,1} - 1) & -c_{1,2} \\ -c_{2,-2} & -c_{2,-1} & -c_{2,1} & -(c_{2,2} - 1) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} L_{-2} \\ L_{-1} \\ L_1 \\ L_2 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \mu_2^{-1} Q_{-2} \\ \mu_1^{-1} Q_{-1} \\ \mu_1^{-1} Q_1 \\ \mu_2^{-1} Q_2 \end{pmatrix}. \quad (3.27)$$

Für diese Approximation kann die Bestimmung der Eigenwerte für den homogenen Teil der diskretisierten Gleichungen explizit analytisch erfolgen. Wegen der Reduktion der Anzahl an Strömen auf vier und der damit verbundenen Möglichkeit das Eigenwertproblem analytisch anzugehen, ist der Rechenaufwand nicht wesentlich höher als beim δ -Zwei-Strom-Verfahren. Die Abweichung der Lösung zur Lösung des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens mit z.B. $N = 32$ Strömen ist vergleichsweise gering.

3.2 Die 3-dimensionale Lösung - SHDOM

Im Gegensatz zu den 1-dimensionalen Strahlungstransportmodellen berücksichtigt das 3-dimensionale Strahlungstransportmodell SHDOM nach *Evans* (1993, 1998) den Einfluss benachbarter Gitterzellen. Das Strahlungsfeld in einer Gitterzelle ist dadurch auch von der Extinktion benachbarter Gitterzellen, welche die Strahlung im horizontal inhomogenen Feld durchläuft, beeinflusst. Wiederum ausgehend von der spektralen Strahlungstransportgleichung aus Gl. (3.1) ergibt sich unter Verwendung der Beziehung Gl. (1.23):

$$\frac{d}{ds} L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu) + \beta_{\text{ext}} L(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu) = \beta_{\text{ext}} Q(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu) \quad (3.28)$$

mit der Quellfunktion:

$$Q(\vec{r}, \vec{\Omega}, \nu) = \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \oint_{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega}' \cdot \vec{\Omega}, \nu) L(\vec{r}, \vec{\Omega}', \nu) d\Omega' + \frac{\tilde{\omega}}{4\pi} \mathcal{P}(\vec{r}, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}_0, \nu) S_0 e^{-\tau_s}. \quad (3.29)$$

Das Lösungsverfahren von SHDOM nach *Evans* (1993, 1998) sieht vor, dass (1) die Quellfunktion Q in Kugelfunktionen berechnet wird. Anschließend wird (2) die

Quellfunktion in diskrete Ordinaten transformiert. Die Integration der Strahlungstransportgleichung (3) erfolgt entlang der diskreten Winkel. Die aus der Integration resultierende Strahldichte wird in Kugelfunktionen (4) entwickelt. Aus der Strahldichte in Kugelfunktionen wird (1) die Quellfunktion in Kugelfunktionen bestimmt. Diese Verfahrensweise wird iterativ so lange angewendet, bis die Strahldichte konvergiert. Im Folgenden werden die einzelnen Schritte zur Lösung der Strahlungstransportgleichung näher erläutert.

(1) Bei der Transformation der Quellfunktion in Kugelfunktionen wird die Phasenfunktion $\mathcal{P}(\cos \Theta)$ zunächst entsprechend der Gl. (3.18) ebenso wie die Strahldichte L in Kugelfunktionen entwickelt:

$$L(s, \vec{\Omega}) = \sum_{m=0}^M \sum_{l=-m}^{L+m} L_{lm}(s) Y_l^m(\vec{\Omega}), \quad (3.30)$$

wobei

$$Y_l^m(\vec{\Omega}) = Y_l^m(\mu, \varphi) = \gamma_{lm} P_l^m(\mu) \cos(m\varphi) \quad (3.31)$$

und

$$\gamma_{lm} = \sqrt{\frac{2l+1}{2\pi(1+\delta_{0m})} \frac{(l-m)!}{(l+m)!}}. \quad (3.32)$$

Unter Verwendung der Orthogonalität der Kugelfunktionen ergibt sich für die Quellfunktion:

$$Q(s, \mu, \varphi) = \sum_{m=0}^M \sum_{l=m}^M Q_{lm}(s) Y_l^m(\mu, \varphi) \quad (3.33)$$

mit

$$Q_{lm} = \frac{\tilde{\omega} p_l}{2l+1} \left[L_{lm}(s) + Y_l^m(\mu_0, \varphi_0) S_0 e^{-\tau_s} \right]. \quad (3.34)$$

Anschließend wird die Quellfunktion in die diskreten Winkel μ_j und φ_k aufgespalten:

$$Q(s, \mu_j, \varphi_k) = \sum_{m=0}^M \sum_{l=m}^M Q_{lm}(s) Y_l^m(\mu_j, \varphi_k). \quad (3.35)$$

Die Transformationskoeffizienten $Y_l^m(\mu_j, \varphi_k)$ können, unter Berücksichtigung von Gl. (3.31), für alle l und m und ein bestimmtes μ_j und φ_k vorab berechnet und gespeichert werden. Durch (2) die Anwendung des Transformationskoeffizienten Y_l^m auf die Quellfunktion in Kugelfunktionen $Q_{lm}(s)$ erhält man die Quellfunktion in diskreten Ordinaten $Q(s, \mu_j, \varphi_k)$. Die (3) Integration der Gl. (3.28) erfolgt entlang der diskreten Ordinaten. Zur Integration der Strahlungstransportgleichung nimmt

man die Quellfunktion als gegeben und konstant an. Die Lösung dieser homogenen Differentialgleichung 1. Ordnung lautet:

$$L(s, \mu_j, \varphi_k) = L_0 e^{-\int_0^s \beta_{\text{ext}}(s') ds'} + \int_0^s \beta_{\text{ext}}(s') Q(s', \mu_j, \varphi_k) e^{-\int_{s'}^s \beta_{\text{ext}}(t) dt} ds'. \quad (3.36)$$

Aus Gl. (3.36) resultiert für jeden diskreten Winkel (μ_j, φ_k) die Strahldichte $L(s, \mu_j, \varphi_k)$, welche anschließend (4) in Kugelfunktionen transformiert wird. Diese wiederum wird in Gl. (3.34) eingesetzt und liefert eine verbesserte Quellfunktion. Bei ausreichender Konvergenz wird der Algorithmus hier beendet. Andernfalls muss die Quellfunktion wiederum in diskrete Ordinaten transformiert und damit ein neuer Iterationsschritt initiiert werden.

Im Gegensatz zum δ -Zwei-Strom-Verfahren oder zum Diskrete-Ordinaten-Verfahren wird zur Beschreibung der optischen Eigenschaften der Atmosphäre beim Lösungsalgorithmus SHDOM nicht von homogenen Schichten ausgegangen. Alle Strahlungseigenschaften sind an einem Punkt definiert. Zwischen den definierten Punkten werden diese Eigenschaften linear interpoliert.

Die horizontale Diskretisierung erfolgt zunächst in konstanten Gitterweiten. Ist der optische Weg durch eine Gitterzelle $\tau_s \ll 1$, so liefert die Integration in Gl. (3.36) ein präzises Ergebnis. In optisch dicken oder sehr inhomogenen Medien ist es jedoch sinnvoll die räumliche Auflösung zu erhöhen. Dies wird mit der „adaptiven Gittermethode“ realisiert. Variiert das Produkt aus Quellfunktion und Extinktionskoeffizient in Gl. (3.36) innerhalb einer Gitterzelle mehr als ein zu definierendes Aufspaltungskriterium, so wird die Gitterzelle in zwei Zellen aufgespalten (entsprechend der Richtung in welcher das Kriterium überschritten wird). Dadurch können die stärker inhomogenen Gebiete, z.B. am Rand einer Wolke, mit einer höheren räumlichen Auflösung berechnet werden. Dies führt zu präziseren Lösungen.

SHDOM kann 1-, 2- oder 3-dimensional verwendet werden. Die seitlichen Randbedingungen, welche zur Lösung der Gl. (3.1) in 2- und 3-dimensionalen Medien notwendig sind, können im Strahlungstransportmodell SHDOM offen oder periodisch sein. Periodische Randbedingungen bedeuten, dass Strahlung, welche das Modellgebiet durch einen Rand verlässt, auf der gegenüberliegenden Seite wieder in das Modellgebiet eintritt. Sie bewirken, dass sich das Modellgebiet in alle horizontalen Richtungen unendlich oft reproduziert. Bei offenen Randbedingungen werden die vier Ecksäulen des Modellgebietes unabhängig vom restlichen Modellgebiet 1-dimensional berechnet. Die vier Seiten werden 2-dimensional gelöst. Offene

Randbedingungen bedeuten also, dass die Eigenschaften der seitlichen Randzellen außerhalb des Modellgebietes homogen fortgesetzt werden.

Kapitel 4

Das Modell zur Berechnung der aktinischen Strahlung

Ziel dieser Arbeit ist die Bestimmung der aktinischen Strahlung unter Berücksichtigung des Einflusses von Aerosolpartikeln und Wolken in horizontal homogener und inhomogener Atmosphäre.

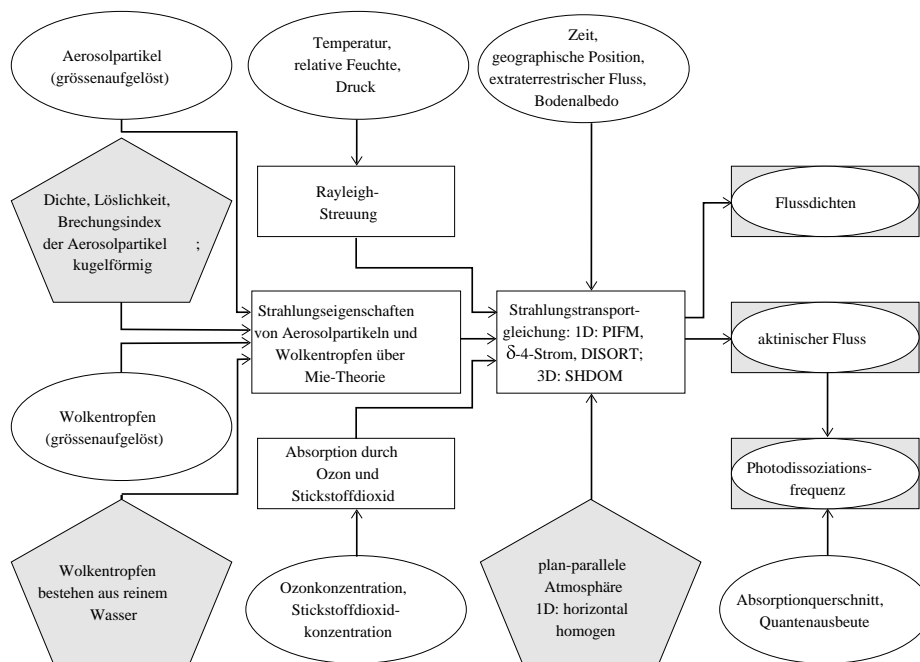


Abbildung 4.1: Überblick über die Eingaben (Ellipsen) und Ausgaben (Ellipsen in Rechtecken) des Modells, sowie die notwendigen Annahmen (Fünfecke) und Berechnungen (Rechtecke).

Abb. 4.1 stellt einen graphischen Überblick über die einzelnen Teile der dazu entwickelten Modellhierarchie dar. Die Ellipsen beschreiben die notwendigen Eingaben für das Modell. Die Modellausgaben sind mit Ellipsen in Rechtecken gekennzeichnet. Die Annahmen, die in das Modell eingehen, sind in den Fünfecken dargestellt. Die Rechtecke enthalten zum einen die Berechnung der optischen Eigenschaften der Luftmoleküle über die Rayleigh-Streuung, der Ozon- und Stickstoffdioxid-Absorption und der Aerosolpartikel und Wolkentropfen über die Mie-Theorie. Zum anderen ist die Lösung der Strahlungstransportgleichung in einem Rechteck dargestellt. Dabei kann jede der in Kap. 3 vorgestellten Lösungsmethoden verwendet werden.

In diesem Kapitel wird zunächst in Abschnitt 4.1 der aktinische Fluss definiert. Dabei wird nicht nur auf den aktinischen Fluss im atmosphärischen Gasgemisch, sondern auch auf dessen Veränderung innerhalb der flüssigen Phase eingegangen. Die Streuung an einem Wolkentropfen verursacht nicht nur die vom Streuzentrum ausgehende Kugelwelle im äußeren Feld der Kugel, sondern auch eine Transmission der Strahlung in das Innere des Wolkentropfens. Abschnitt 4.2 beschreibt die Eigenschaften der beiden untersuchten Photodissoziationsfrequenzen $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$. Dabei wird offensichtlich, dass zur Bestimmung dieser Photodissoziationsfrequenzen eine recht hohe spektrale Auflösung des Modells notwendig ist, welche in Abschnitt 4.3 beschrieben wird. Am Ende dieses Kapitels in Abschnitt 4.4 wird die Modelleingabe skizziert.

4.1 Der aktinische Fluss

Der aktinische Fluss $F_{\text{act}}(\vec{r}, \nu)$, in $\text{W m}^{-2}\text{nm}^{-1}$, ist als „sphärischer Fluss“ zu verstehen, da $F_{\text{act}}(\vec{r}, \nu)$ durch die Integration der Strahldichte L über die Oberfläche der Einheitskugel bestimmt wird:

$$F_{\text{act}}(\vec{r}, \nu) = \int_0^{2\pi} \int_{-1}^{+1} L(\vec{r}, \mu, \varphi, \nu) d\mu d\varphi. \quad (4.1)$$

Es ist somit der an einem Ort zur Verfügung stehende spektrale Strahlungsfluss. Die Dimension des aktinischen Flusses ist identisch mit der der Strahlungsflussdichte. Die Strahlungsflussdichte $E(\vec{r}, \nu)$ ist jedoch der Strahlungsfluss auf eine ebene, im Normalfall horizontal ausgerichtete, Fläche. Zur Berechnung von $E(\vec{r}, \nu)$ (vgl. Gl. (3.5)) wird die Strahldichte L mit dem Kosinus des Zenitwinkels gewichtet.

Neben dem aktinischen Fluss im atmosphärischen Gasgemisch ist auch der aktini-

sche Fluss in der flüssigen Phase, also den Wolkentropfen, von großem Interesse für die Photochemie. Die Mie-Theorie bietet die Möglichkeit einer exakten Formulierung der zeitlich gemittelten elektromagnetischen Energie $W(x, n)$ innerhalb einer dielektrischen Kugel (*Bott und Zdunkowski, 1987*) abhängig vom Mie-Größenparameter x (vgl. Gl. 1.8) und dem Brechungsindex n (vgl. Gl. 1.10).

Die in den Wolkentropfen transmittierte Energie wird innerhalb des Tropfens reflektiert. Dadurch ändert sich der aktinische Fluss im Vergleich zu den Bedingungen außerhalb des Tropfens. Zur Bestimmung der Veränderung des aktinischen Flusses im Vergleich zu den Bedingungen außerhalb des Tropfens wird die normierte elektromagnetische Energie $W_n(x, n) = W(x, n_{\text{was}})/W_0(x, n_0)$ verwendet. W_0 ist dabei die zeitlich gemittelte, elektromagnetische Energie einer Kugel, deren elektromagnetische Eigenschaften denen des umgebenden Mediums entsprechen.

Die Mie-Berechnungen zeigen, dass im Mittel die Energie innerhalb der Tropfen mehr als doppelt so groß ist wie im Außenraum. In bestimmten Resonanzgebieten kann diese Erhöhung jedoch auch mehr als zwei Größenordnungen betragen. Diese Resonanz kann dann für die Photochemie von Bedeutung sein, wenn sie mit den Absorptionslinien der im Wasser gelösten Substanzen zusammenfallen. Bisher wurde jedoch noch keine solche Substanz gefunden (*Brühl, priv. Mitteilung, 2000*).

Deutlich erkennbar sind diese Resonanzen in Abb. 4.2. In dieser Abbildung ist $W_n(x, n)$ in Abhängigkeit vom Mie-Größenparameter x dargestellt. Der untere Teil von Abb. 4.2 zeigt den Mie-Größenbereich zwischen $x = 49$ und $x = 51$, so dass die Resonanzen in diesem Größenbereich einzeln aufgelöst sind. Zur Berechnung des in Abb. 4.2 dargestellten $W_n(x, n)$ wurde eine Schrittweite von $\Delta x = 2 \cdot 10^{-5}$ verwendet, was etwa 14 Millionen Gitterpunkte im Mie-Größenbereich zwischen $x = 5$ und $x = 280$ erfordert. Zur Auflösung der Resonanzen ist also ein sehr hoher Rechenaufwand notwendig.

Zur Bestimmung der Veränderung des aktinischen Flusses in der gesamten Flüssigphase einer Wolke $W_{n,\text{dis}}(n)$ muss die Veränderung innerhalb eines einzelnen Wolkentropfens $W_n(x, n)$ mit der Größenverteilung der Tropfen $dN_{\text{dro}}/d \log r$ (Gl. (2.26)) gewichtet (analog zu Gl. (2.31) und Gl. (2.32)) über die Radien integriert werden:

$$W_{n,\text{dis}}(n) = \int_0^{\infty} \frac{dN_{\text{dro}}}{d \log r} W_n(x, n) d \log r. \quad (4.2)$$

Die aus Gl. (4.2) resultierenden Werte von $W_{n,\text{dis}}$ verschiedener Wolkentropfen-größenverteilungen sind in Tab. 4.1 dargestellt und stimmen sehr gut mit den Er-

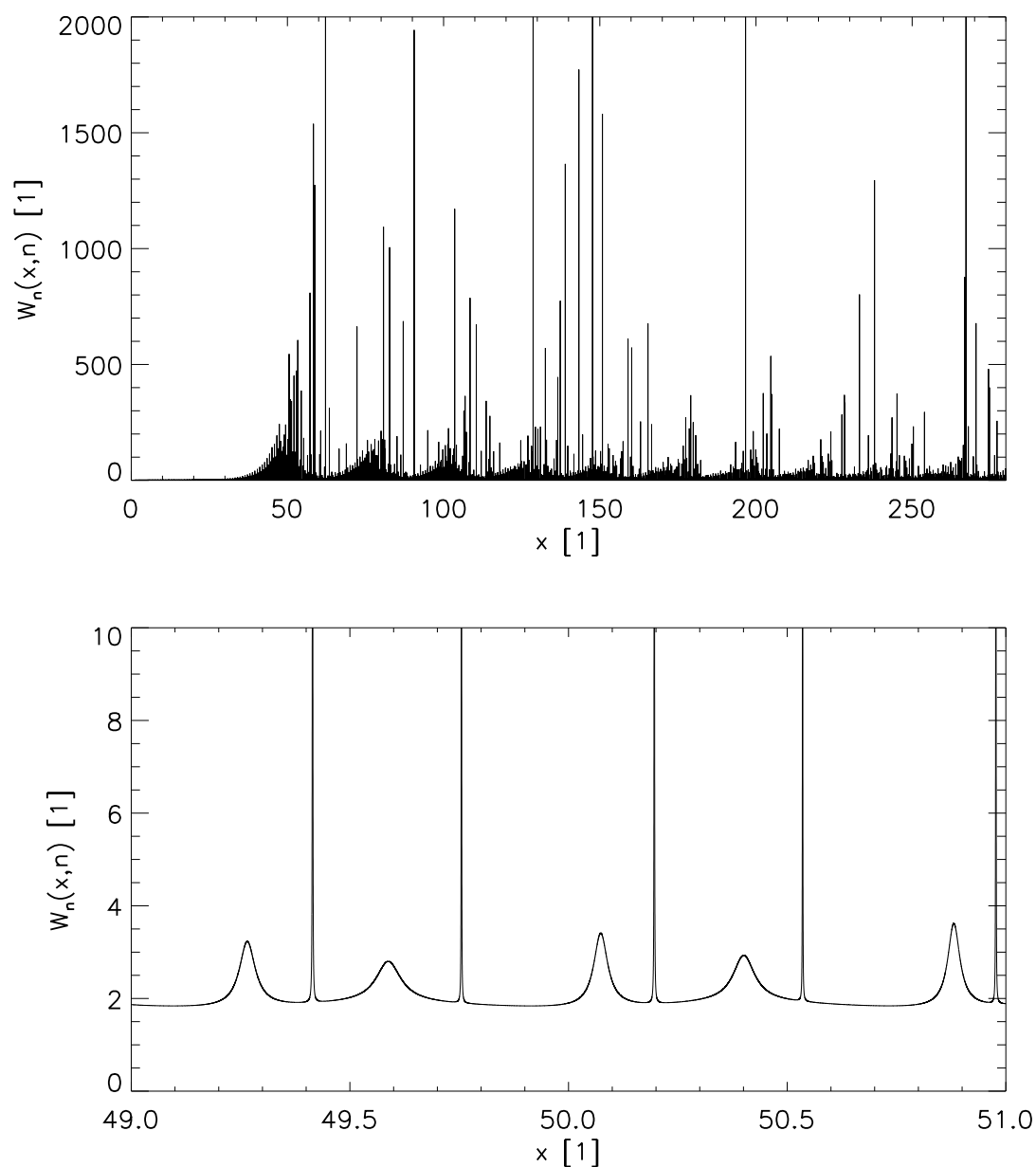


Abbildung 4.2: Oben: Zeitlich gemittelte und normierte elektromagnetische Energie $W_n(x, n)$ in Abhängigkeit vom Mie-Größenparameter x . Unten: Ausschnitt für $49 < x < 51$.

gebnissen von *Ruggaber et al.* (1997) überein, welche eine ähnliche Untersuchung für andere Wolkentropfengrößenverteilungen durchgeführt haben. Auch Variationen des Brechungsindex, beispielsweise durch Verunreinigung der Tropfen mit Aerosol unterschiedlichster Herkunft, verändern den Faktor $W_{n,dis}$ nicht wesentlich (*Rugga-*

| Wolkentyp | $W_{n,\text{dis}}$ | Wolkentyp | $W_{n,\text{dis}}$ |
|------------------|--------------------|--------------|--------------------|
| Stratus I | 2.327 | Nimbostratus | 2.297 |
| Stratus II | 2.333 | Altostratus | 2.185 |
| Stratocumulus I | 2.273 | Cumulus | 2.322 |
| Stratocumulus II | 2.235 | Cumulonimbus | 1.936 |

Tabelle 4.1: $W_{n,\text{dis}}$ für verschiedene Wolkentropfenverteilungen.

ber et al., 1997). Die Variationsbreite von $W_{n,\text{dis}}$ beträgt weniger als 10%.

Der aktinische Fluss innerhalb der flüssigen Phase kann durch Multiplikation des aktinischen Flusses außerhalb des Tropfen mit $W_{n,\text{dis}}$ bestimmt werden.

4.2 Die Photodissoziationsfrequenzen

Die Photodissoziationsfrequenz J , in s^{-1} , beschreibt die Frequenz, mit welcher ein bestimmtes atmosphärisches Molekül AB auf Grund von Strahlungseinwirkung photolysiert wird, d.h.



Voraussetzung dafür ist, dass die Energie des absorbierten Photons größer ist als die chemische Bindungsenergie. Photolysereaktionen sind Reaktionen erster Ordnung, d.h. die Änderung der Konzentrationen von $[A]$ und $[B]$ sind proportional zur Konzentration des Ausgangsstoffes $[AB]$:

$$\frac{d[A]}{dt} = \frac{d[B]}{dt} = J_{AB \rightarrow A+B} \cdot [AB]. \quad (\text{R-4.2})$$

Der Proportionalitätsfaktor ist die Photodissoziationsfrequenz $J_{AB \rightarrow A+B}$.

Analytisch lässt sich die Photodissoziationsfrequenz als Integral des Produktes aus Quantenausbeute ϕ_{A+B} , Absorptionsquerschnitt σ_{AB} und aktinischem Fluss F_{act} ^[1] über die Wellenlänge λ bestimmen:

$$J_{AB \rightarrow A+B} = \int_0^{\infty} \phi_{A+B}(T, \lambda) \sigma_{AB}(T, \lambda) F_{\text{act}}(\vec{r}, \lambda) d\lambda. \quad (\text{R-4.3})$$

Die Quantenausbeute ϕ_{A+B} beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass das Molekül AB in die Produkte A und B dissoziiert. Sowohl die Quantenausbeute als auch der

^[1] F_{act} wird hier als Funktion der Wellenlänge anstatt der Frequenz (vgl. Gl. (1.2)) und in Einheiten von Photonen $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}\text{nm}^{-1}$ verwendet.

Absorptionsquerschnitt können von der Temperatur T der umgebenden Luftmasse und der Wellenlänge λ abhängig sein.

4.2.1 Die Photodissoziation von Stickstoffdioxid

Die atmosphärische Photodissoziation von NO_2 ist eine Schlüsselreaktion, welche die Aufteilung der NO_x -Komponenten (NO und NO_2), den photochemischen Gleichgewichtszustand von O_3 , NO_2 und NO und die photochemische Produktion von troposphärischem Ozon (*Finlayson-Pitts und Pitts, 1986*) bestimmt. Die Aufspaltung von Stickstoffdioxid in Stickstoffmonoxid und ein Sauerstoffradikal bei Wellenlängen kleiner 420 nm erfolgt gemäß



Durch die anschließende Reaktion des atomaren Sauerstoffs mit molekularem Sauerstoff entsteht Ozon. Die Photodissoziationsfrequenz, mit welcher Stickstoffdioxid in NO und O aufgespalten wird, wird im Folgenden mit $J(\text{NO}_2)$ bezeichnet.

Die durchgezogene Linie in Abb. 4.3 beschreibt die temperaturunabhängige Quantenausbeute $\phi_{\text{NO}+\text{O}}$ nach *DeMore et al. (1997)*. Deutlich erkennbar ist die hohe Wahrscheinlichkeit, dass Stickstoffdioxid bei $\lambda < 410$ nm photolysiert. Bei $\lambda = 425$ nm ist die Wahrscheinlichkeit bereits gleich null.

Die strich-dreifach-punktierte Linie beschreibt das normierte Produkt aus Quantenausbeute $\phi_{\text{NO}+\text{O}}$, Absorptionsquerschnitt σ_{NO_2} und aktinischem Fluss F_{act} am Oberand der Troposphäre in 10 km Höhe. Dieses Produkt verdeutlicht den für $J(\text{NO}_2)$ in der Troposphäre relevanten Wellenlängenbereich zwischen 360 nm und 410 nm. Die Maxima in diesem Wellenlängenbereich sind durch das Ansteigen von σ_{NO_2} (vgl. Abb. 1.5) mit zunehmender Wellenlänge bis $\lambda = 400$ nm und das Ansteigen des extraterrestrischen Flusses S_0 (vgl. Abb. 1.3) verursacht. Die Beiträge zu $J(\text{NO}_2)$ aus dem Wellenlängenbereich $\lambda < 360$ nm, in welchem Ozon stark absorbiert (vgl. Abb. 1.4), sind dagegen gering. Deshalb hat eine Änderung der Ozonkonzentration in der Atmosphäre nur einen geringen Einfluss auf die Photodissoziationsfrequenz von NO_2 (*Van Weele und Duynkerke, 1993*).

4.2.2 Die Photodissoziation von Ozon in $\text{O}(^1\text{D})$

Photolysereaktionen regen die Atmosphärenchemie durch die Bildung von Radikalen an. Die Photolyse von Ozon, welche zur Bildung von $\text{O}(^1\text{D})$ führt, verläuft

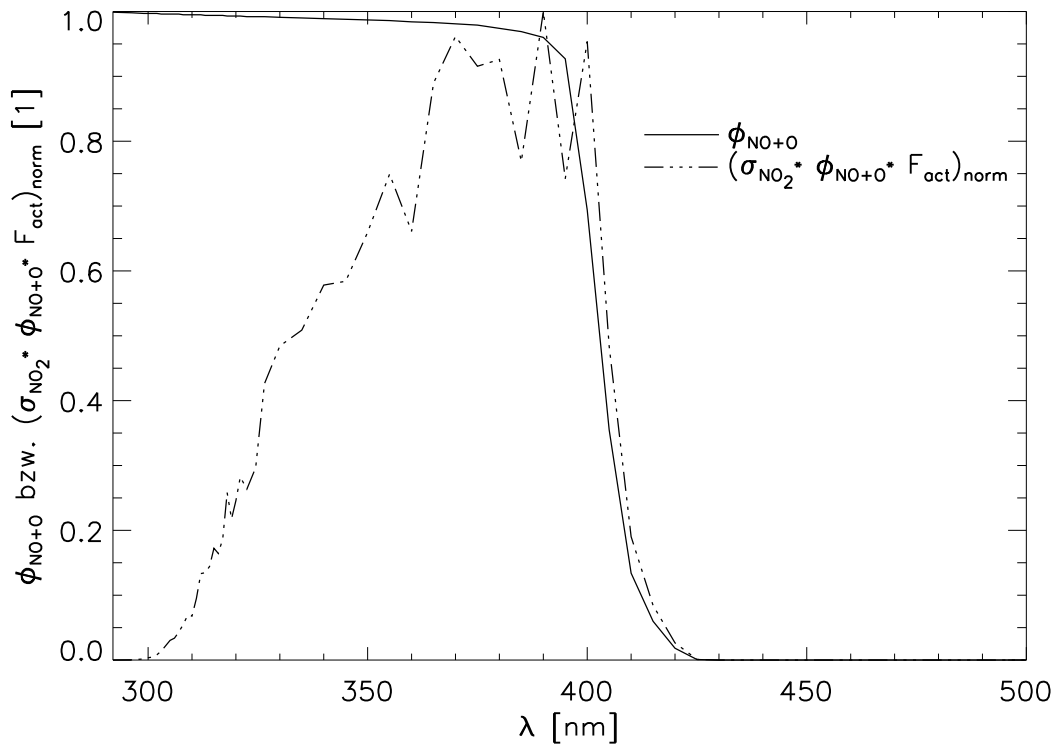
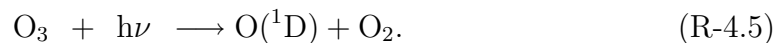


Abbildung 4.3: $\phi_{\text{NO}+\text{O}}$ nach *DeMore et al.* (1997) und das normierte Produkt aus $\sigma_{\text{NO}_2} \cdot \phi_{\text{NO}+\text{O}} \cdot F_{\text{act}}$. Für F_{act} wurden die Werte vom Oberrand der Troposphäre in 10 km Höhe verwendet.

entsprechend:



Die an die Photolyse in Reaktion (R-4.5) anschließende Reaktion von $\text{O}({}^1\text{D})$ mit Wasserdampf führt zur Produktion des Hydroxylradikals OH. Die Reaktion (R-4.5) ist die wichtigste Quelle für OH in der Troposphäre (*Ravishankara et al.*, 1998).

Findet diese Reaktion bei Wellenlängen $\lambda < 310$ nm statt, so sind beide Dissoziationsprodukte in einem angeregten Zustand, was ein ungewöhnliches Ergebnis einer chemischen Reaktion ist (*Ravishankara et al.*, 1998). Im Wellenlängenbereich zwischen 310 nm und 411 nm wird das Ozon ebenfalls entsprechend der Reaktion (R-4.5) photolysiert. Diese Reaktion erfolgt über einen spinverbotenen Aufspaltungskanal von Ozon (*Talukdar et al.*, 1998). Der durch diese Reaktion entstandene molekulare Sauerstoff ist nicht angeregt. Im Wellenlängenbereich zwischen 350 nm und 411 nm ist der Absorptionsquerschnitt von Ozon jedoch so klein (vgl. Abb. 1.4), dass die Beiträge der Ozonphotolyse aus diesem Wellenlängenbereich in der Atmosphäre nicht

relevant sind.

Bei Wellenlängen $\lambda > 411$ nm kann Ozon in $O(^3P)$ und O_2 aufgespalten werden. Aus diesem Grund wäre die Bezeichnung $J(O_3)$, analog zu $J(NO_2)$, für die Reaktion (R-4.5) nicht eindeutig. Deshalb verwendet man für die Photodissoziationsfrequenz, mit welcher Ozon in $O(^1D)$ und O_2 aufgespalten wird, die Bezeichnung $J(O(^1D))$.

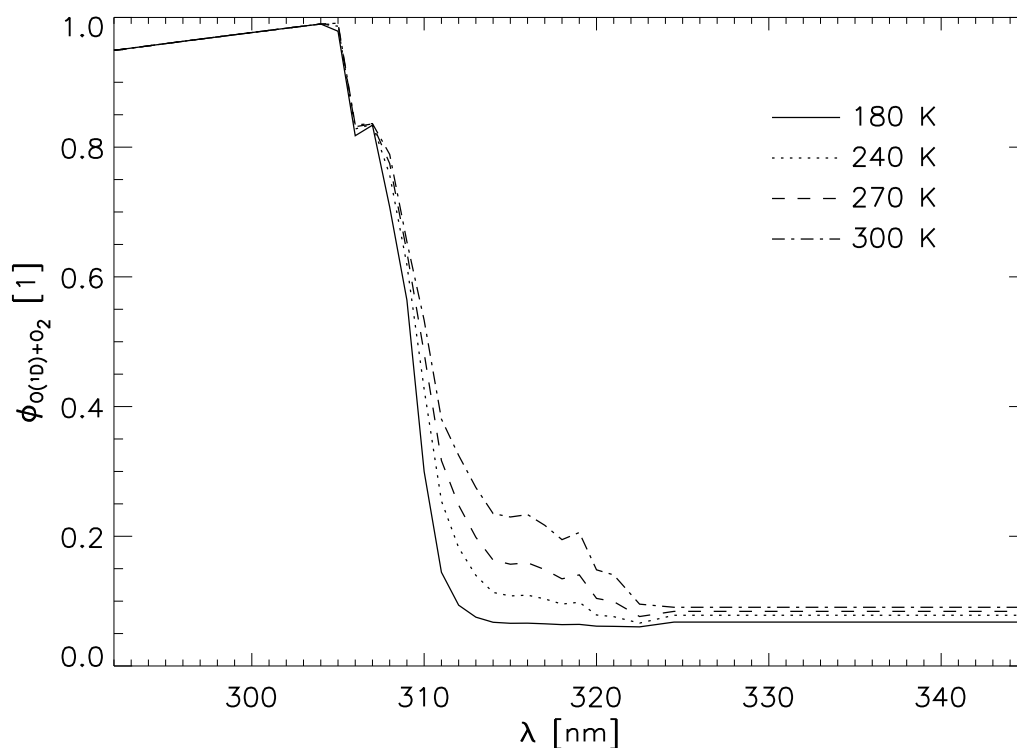


Abbildung 4.4: $\phi_{O(^1D)+O_2}$ nach *Talukdar et al.* (1998) in Abhängigkeit von λ für $T = 180$ K, $T = 240$ K, $T = 270$ K und $T = 300$ K.

Die beiden genannten Reaktionen zur Dissoziation von Ozon führen zur Quantenausbeute $\phi_{O(^1D)+O_2}$ nach *Talukdar et al.* (1998) dargestellt in Abb. 4.4. Deutlich erkennbar ist die hohe Wahrscheinlichkeit bei Wellenlängen $\lambda < 310$ nm, dass Ozon in $O(^1D)$ und O_2 dissoziiert. Bei $\lambda > 310$ nm nimmt diese Wahrscheinlichkeit sehr stark ab. Die Temperaturabhängigkeit wird erst bei der spinverbotenen Reaktion deutlich. In Abb. 4.4 ist zur Darstellung der Temperaturabhängigkeit die Quantenausbeute $\phi_{O(^1D)+O_2}$ für vier verschiedene Temperaturen eingezeichnet. Die durchgezogene Linie beschreibt $\phi_{O(^1D)+O_2}$ bei $T = 180$ K, die gepunktete bei $T = 240$ K, die gestrichelte bei $T = 270$ K und die strich-punktierte bei $T = 300$ K.

Bei höherer Temperatur ist die Wahrscheinlichkeit für eine Photodissoziation größer.

Sowohl $\phi_{\text{O}^{(1\text{D})}+\text{O}_2}$ als auch σ_{O_3} (vgl. Abb. 1.4) steigen mit zunehmender Temperatur an. Die Temperaturabhängigkeit von $J(\text{O}^{(1\text{D})})$ zusammen mit dem Vertikalprofil der Temperatur in der Atmosphäre bewirken eine Abhängigkeit von $J(\text{O}^{(1\text{D})})$ vom Vertikalprofil der Ozonkonzentration.

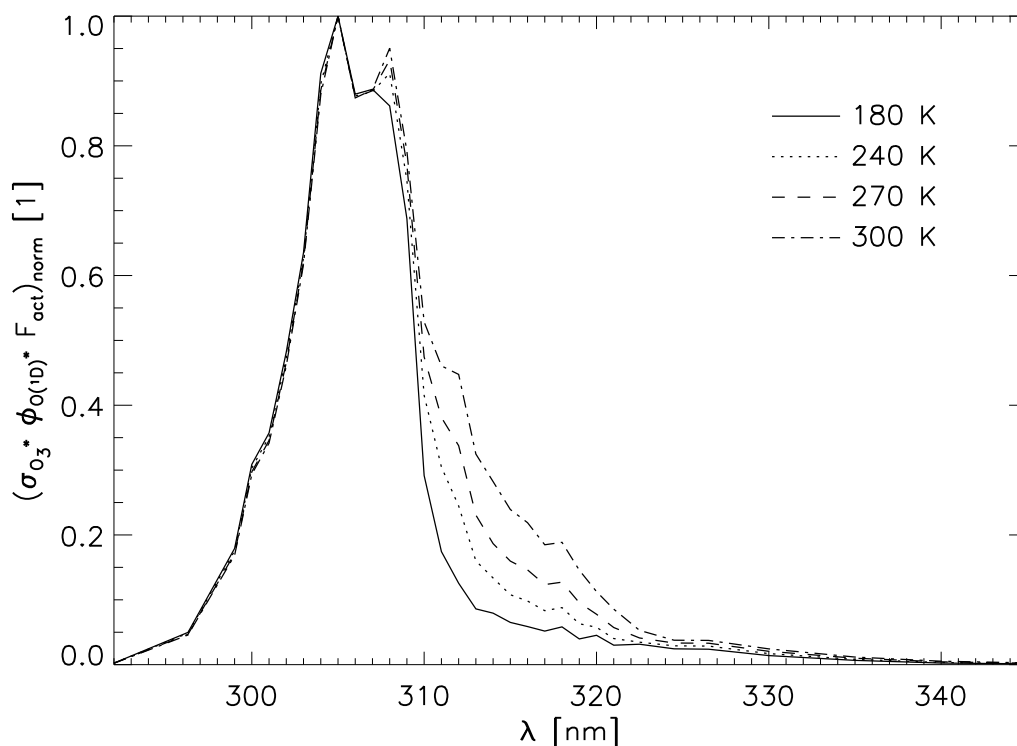


Abbildung 4.5: Normiertes Produkt aus Quantenausbeute, Absorptionsquerschnitt und aktinischem Fluss am Oberrand der Troposphäre (in 10 km Höhe) bei $T = 180$ K, $T = 240$ K, $T = 270$ K und $T = 300$ K.

In Abb. 4.5 ist das temperaturabhängige, normierte Produkt $\phi_{\text{O}^{(1\text{D})}+\text{O}_2} \cdot \sigma_{\text{O}_3} \cdot F_{\text{act}}$ am Oberrand der Troposphäre in 10 km Höhe dargestellt. Diese Kurven verdeutlichen den für $J(\text{O}^{(1\text{D})})$ in der Troposphäre relevanten Wellenlängenbereich. Es wird deutlich, dass, obwohl $\phi_{\text{O}^{(1\text{D})}+\text{O}_2}$ bei Wellenlängen größer 310 nm stark abnimmt, das normierte Produkt bis $\lambda = 320$ nm einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag zur Photodissoziation leistet. Dies ist besonders bei höheren Temperaturen der Fall.

4.3 Die spektrale Auflösung

Die Bestimmung der aktinischen Strahlung erfordert die Berechnung der energiereichen kurzwelligigen Strahlung. Wegen der starken spektralen Abhängigkeit, sowohl des extraterrestrischen Flusses, als auch der Absorptionsquerschnitte muss der aktinische Fluss zur Berechnung von Photodissoziationsfrequenzen spektral hochaufgelöst bestimmt werden. Die spektrale Strahlungstransportgleichung, deren Lösung in Kap. 3 abgeleitet wurde, wurde deshalb in dem entwickelten Modell für 133 Wellenlängenintervalle im Bereich zwischen 290 nm und 852.5 nm gelöst.

| λ_i , nm | $\Delta\lambda_i$, nm |
|-----------------------|------------------------|
| 292, 296.3 | 4.3 |
| 299, 300, . . . , 321 | 1 |
| 322.5, 324.5, 326.5 | 2 |
| 330, 335, . . . , 850 | 5 |

Tabelle 4.2: Mittelpunkte der Wellenlängenintervalle λ_i und Intervallbreite $\Delta\lambda_i$ für das Strahlungstransportmodell.

In Tab. 4.2 sind die Mittelpunkte der verwendeten Spektralintervalle und deren Breite aufgelistet. Grundlage für die gewählte spektrale Auflösung ist eine Empfehlung des *WMO-Report* (1986) mit einer Verfeinerung in der Ozonabsorptionsbande zwischen 300 nm und 321 nm.

Für die Bestimmung von $J(\text{NO}_2)$ ist der Wellenlängenbereich $\lambda < 420$ nm relevant. Zur Berechnung von $J(\text{NO}_2)$ ist eine spektrale Auflösung von $\Delta\lambda = 5$ nm ausreichend, da diese die Fehler der numerischen Integration kleiner 5% hält (*Madronich und Weller*, 1990). Im Wellenlängenbereich $\lambda \geq 330$ nm konnte deshalb die Intervallbreite auf $\Delta\lambda = 5$ nm verbreitert werden.

Da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der Bestimmung der aktinischen Strahlung in der Troposphäre liegt, ist Strahlung mit Wellenlängen $\lambda < 290$ nm vernachlässigbar, da diese vollständig bereits oberhalb der Troposphäre absorbiert wird. Mit dieser Wellenlängenauflösung können nicht nur die beiden bereits diskutierten Photodissoziationsfrequenzen (Abschnitt 4.2) berechnet werden, sondern viele andere mehr (vgl. *DeMore et al.*, 1997).

Die spektrale Lösung der Strahlungstransportgleichung in 133 Wellenlängenintervallen erfordert einen hohen Rechenaufwand, besonders bei Verwendung des 3-dimensionalen Strahlungstransportmodells SHDOM. Da die Strahlungstransport-

gleichung für 133 Spektralintervalle unabhängig gelöst werden muss, bietet sich eine Parallelisierung über die Wellenlängenintervalle an. Dies wurde mit dem „message passing interface“ (MPI) für das Strahlungstransportmodell SHDOM durchgeführt. Der Vorteil der Parallelisierung mit MPI liegt darin, dass das Modell dadurch nicht an einen Parallelrechner gebunden ist, sondern auf jeglicher Art Parallelrechner oder auch einem Cluster mehrerer Einzelrechner auf mehreren Prozessoren parallel ausgeführt werden kann. Die Anzahl der verwendeten Prozessoren ist variabel, so dass im Idealfall jeder Prozessor lediglich ein Wellenlängenintervall bearbeitet. Stehen weniger Prozessoren als Wellenlängenintervalle zur Verfügung, werden die Wellenlängenintervalle so auf die einzelnen Prozessoren verteilt, dass die Rechenzeiten der einzelnen Prozessoren in etwa gleich sind („load balancing“). Durch die Verteilung auf mehrere Prozessoren ergibt sich eine verkürzte Gesamtrechenzeit für die Simulation.

Für verschiedene Vergleiche mit Messungen oder den Ergebnissen anderer Strahlungstransportmodelle wurde die Wellenlängenaufösung auf $\Delta\lambda = 1$ nm verfeinert. Die spektrale Strahlungstransportgleichung wurde in diesen Fällen für 559 Wellenlängenintervalle im Bereich zwischen 291.5 nm und 850.5 nm gelöst. Sofern diese Wellenlängenaufösung verwendet wurde, ist dies bei der Beschreibung der Modelleingabe vermerkt.

4.4 Die Modelleingabe

Zur Evaluierung des entwickelten Modells ist ein Vergleich der Modellergebnisse mit Beobachtungsdaten notwendig. Solch ein Vergleich ist jedoch nur dann sinnvoll und aussagekräftig, wenn auch die Modelleingabe den atmosphärischen Bedingungen zum Messzeitpunkt entspricht. Neben den Messungen der Strahlung müssen deshalb zusätzliche Messungen durchgeführt werden, die den Zustand der Atmosphäre beschreiben.

Aus der geographischen Länge λ_{geo} , welche 0° in Greenwich, England, und positiv für die westliche Hemisphäre ist, und der geographischen Breite ϕ_{geo} des Messortes, welche 0° am Äquator und positiv für die Nordhalbkugel ist, dem Datum und der lokalen Zeit, auch bezeichnet als wahre Sonnenzeit, lassen sich der Sonnenzenitwinkel ϑ_0 und Sonnenazimutwinkel φ_0 bestimmen (Iqbal, 1983). ϑ_0 ist gegeben durch:

$$\cos \vartheta_0 = \sin \delta \sin \phi_{\text{geo}} + \cos \delta \sin \phi_{\text{geo}} \cos \omega. \quad (4.3)$$

δ ist die Sonnendeklination. Dies ist der Winkel zwischen der Ekliptik und der Fläche durch den Erdäquator. Die Ekliptik ist die Ebene, auf welcher die Bahn der Erde um die Sonne liegt. Die Sonnendeklination ist vom Tag des Jahres abhängig: Null an den Tagen der Tages-und-Nacht-Gleiche und $+23.5^\circ$ bzw. -23.5° an der Sommer- bzw. Wintersonnenwende.

Die wahre Sonnenzeit setzt sich additiv aus der lokalen Standardzeit, einer Korrektur für die geographische Länge λ_{geo} und der Zeitgleichung zusammen. Die Zeitgleichung beschreibt die Differenz der wahren zur mittleren Sonnenzeit, welche $+16$ min bis -14 min betragen kann. Diese Differenz entsteht durch die sich ändernde Position der Erde zur Sonne während des Jahres auf Grund der Ellipsenform der Erdbahn und der Neigung der Erdachse.

Der Stundenwinkel ω beschreibt den Tagesgang der Sonne und ist somit von der Tageszeit abhängig. ω ändert sich pro Stunde um 15° und ist um 12 Uhr Mittags null. Am Morgen ist ω positiv. Dabei entspricht die verwendete Uhrzeit der wahren Sonnenzeit.

Der Sonnenazimutwinkel φ_0 ist gegeben durch:

$$\sin \varphi_0 = \frac{\cos \delta \sin \omega}{\sin \vartheta_0}. \quad (4.4)$$

Die untere Randbedingung in den vorgestellten Strahlungstransportmodellen wird von der Bodenalbedo beschrieben. Sofern die spektrale Bodenalbedo nicht aus Messungen bekannt ist, kann auf tabellierte Daten (*Bowker et al.*, 1985) zurückgegriffen werden. Diese Daten stehen für die unterschiedlichsten Oberflächenbeschaffenheiten der Erde zur Verfügung.

Aus Luftdruck p , Temperatur T , der Gaskonstanten der trockenen Luft R_0 , der Avogadro-Konstanten N_A und der molaren Masse des atmosphärischen Gasgemisches \bar{m}_0 erhält man unter der Annahme, Luft verhalte sich wie ein ideales Gas, die zur Bestimmung der Rayleigh-Streuung benötigte Anzahlkonzentration Luftmoleküle N_{Luft} , an denen die einfallende Strahlung gestreut wird:

$$N_{\text{Luft}} = \frac{p}{T} \frac{N_A}{\bar{m}_0 R_0}. \quad (4.5)$$

Sofern keine Messungen vorhanden sind, kann auch auf Literaturwerte beispielsweise von *McClatchey et al.* (1971), welche Standardwerte für die Atmosphäre enthalten, zurückgegriffen werden.

Zur Bestimmung der atmosphärischen Ozonkonzentration kann ein gemessenes Vertikalprofil, beispielsweise mit einem Sondenaufstieg, verwendet werden. Dadurch

ergibt sich die Ozonkonzentration im unteren Teil der Atmosphäre. Als zusätzliche Information dient die Ozonsäule, entweder vor Ort gemessen oder aus Satellitendaten interpoliert. Diese beinhaltet den gesamten Ozongehalt der Atmosphäre. Die Einheit, in welcher die Ozonsäule I_{O_3} angegeben wird, sind Dobson Units (DU). 100 DU entsprechen dabei einer Ozonschichtdicke von 1 mm, wenn das gesamte Ozon in einer vertikalen Säule den atmosphärischen Normaldruck von 1013.25 hPa und eine Temperatur von 0°C hat, d.h. 1 DU entspricht $k_{DU} = 2.69 \cdot 10^{16}$ Ozonmolekülen cm^{-2} (Graedel und Crutzen, 1994).

Um diese beiden Informationen zusammenzufassen, wird zunächst das Vertikalprofil der Ozonkonzentration auf die Molekülanzahl N_{O_3} umgerechnet. Liegt beispielsweise ein Vertikalprofil der Dichte von Ozon ρ_{O_3} bis zu einer Höhe z_1 vor, so erfolgt die Umrechnung auf die Molekülanzahl über:

$$N_{O_3}(z) = \frac{N_A}{\bar{m}_{O_3}} \rho_{O_3}(z), \quad (4.6)$$

wobei \bar{m}_{O_3} die molare Masse von Ozon ist. Aus dem Vertikalprofil der Molekülanzahl N_{O_3} wird die Ozonsäule des unteren Teils der Atmosphäre U_{O_3} bis zur Höhe z_1 bestimmt:

$$U_{O_3} = \frac{1}{k_{DU}} \int_0^{z_1} N_{O_3}(z) dz. \quad (4.7)$$

Die Ozonsäule der oberen Atmosphäre O_{O_3} ergibt sich durch Subtraktion der Ozonsäule der unteren Atmosphäre U_{O_3} von der gemessenen Gesamtozonsäule I_{O_3} :

$$O_{O_3} = I_{O_3} - U_{O_3}. \quad (4.8)$$

Für den oberen Teil der Atmosphäre, für welchen keine Konzentrationsmessungen vorhanden sind, geben Standardvertikalprofile der Ozonkonzentration, z.B. *McClatchey et al.* (1971), die Form des Profils vor. Dieses wird jedoch so skaliert, dass die Ozonsäule für den oberen Teil der Atmosphäre O_{O_3} resultiert. Auf diese Art kann die atmosphärische Ozonkonzentration bis weit über die Messhöhe der Sonde hinaus bestimmt werden. Dies ist notwendig, da in den Strahlungstransportmodellen das stratosphärische Ozon unbedingt berücksichtigt werden muss, da die stratosphärische Ozonkonzentration sehr viel höher ist als die troposphärische und zu nahezu vollständiger Absorption der kurzwelligeren Strahlung mit Wellenlängen $\lambda < 300 \text{ nm}$ in der Stratosphäre führt (vgl. Abschnitt 1.1). Damit die Ozonschicht in den Strahlungstransportmodellen vollständig erfasst werden kann, muss die vertikale Erstreckung des Modellgebietes über die Stratosphäre hinaus bis in Höhen von

60 km bis 70 km reichen. Sind keine Messungen vorhanden, so kann wiederum auf Literaturwerte von *McClatchey et al.* (1971) zurückgegriffen werden.

Die Anzahl Stickstoffdioxidmoleküle N_{NO_2} wird analog aus Messungen oder Literaturprofilen (*McClatchey et al.*, 1971) abgeleitet.

Messungen der Aerosolgrößenverteilung liefern die Verteilungsparameter, welche in Gl. (2.10) eingehen. Je nach Messmethode der Aerosolgrößenverteilung wird die Größe der trockenen oder feuchten Partikel bestimmt. Sofern die trockene Größenverteilung der Partikel gemessen wurde, kann das Aufquellen der Aerosolpartikel entsprechend Gl. (2.14) und der ebenfalls gemessenen relativen Feuchte rh der umgebenden Luftmasse simuliert werden.

Zusätzlich zu den Messungen der Aerosolgrößenverteilung sind Messungen der chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel notwendig.

Bei Mangel an exakten Messdaten können sowohl für die Aerosolanzahlkonzentration und Größenverteilung, als auch für den Brechungsindex, die Dichte und die Löslichkeit der Aerosolpartikel Literaturwerte (*McClatchey et al.*, 1971; *Jaenicke*, 1988; *Shettle und Fenn*, 1979) verwendet werden.

Die Diskretisierung der bisher beschriebenen Parameter N_{Luft} , N_{O_3} , N_{NO_2} , rh und der Parameter der Aerosolgrößenverteilung erfolgt lediglich in vertikaler Richtung auf einem 1-dimensionalen Gitter. Horizontale Inhomogenitäten der meteorologischen und aerosolphysikalischen Eigenschaften werden dadurch vernachlässigt.

Zur Diskretisierung einer Wolke für eine Simulation müssen deren geometrische Ausdehnung und die mikrophysikalischen Eigenschaften gemessen werden. Die mikrophysikalischen Eigenschaften einer Wolke lassen sich mit einer Größenverteilung der Wolkentropfen entsprechend Gl. (2.26) beschreiben. Erstreckt sich die Wolke über große Gebiete und ist horizontal homogen, so können die Strahlungseigenschaften der Wolke mit einem 1-dimensionalen Strahlungstransportmodell beschrieben werden. Bei horizontal inhomogenen Wolken oder durchbrochener Bewölkung ist die Anwendung des 1-dimensionalen Strahlungstransportmodells nicht möglich. In diesen Fällen müssen die Eigenschaften der Tropfenverteilung geeignet auf ein 2- oder 3-dimensionales Gitter übertragen werden.

Ist die Tropfengrößenverteilung in der Wolke nicht aus Messungen bekannt, so kann man über den adiabatischen Flüssigwassergehalt Q_{ad} die maximale Wassermenge, die in einer Wolke vorhanden sein kann, bestimmen und dadurch zu einem approximierten Wert für den Flüssigwassergehalt einer Wolke gelangen. Der adiabatische Flüssigwassergehalt Q_{ad} , in kg kg^{-1} , folgt aus dem ersten Hauptsatz der Thermo-

dynamik und lautet in approximierter Form (*Rogers und Yau, 1989*):

$$Q_{\text{ad}} \simeq 4.06 \cdot 10^{-4} (\Gamma - \Gamma_f) dh. \quad (4.9)$$

Hierbei ist

$$\Gamma = \frac{g_E}{c_{p0}} \quad (4.10)$$

der trockenadiabatische Temperaturgradient und

$$\Gamma_f \simeq \Gamma \frac{1 + \frac{\ell_{21} r_{21}}{R_0 T}}{1 + \frac{\ell_{21} r_{21}}{c_{p0}} \frac{d \ln p^{21}}{dT}} \quad (4.11)$$

der feuchtadiabatische Temperaturgradient. Dabei ist g_E die Schwerebeschleunigung, c_{p0} die spezifische Wärme trockener Luft, ℓ_{21} die latente Verdampfungswärme, r_{21} die spezifische Feuchte, T die Temperatur, R_0 die Gaskonstante für trockene Luft und p^{21} der Sättigungsdampfdruck über Wasser.

Der tatsächlich vorhandene Flüssigwassergehalt in der Wolke wird i.A. geringer sein, da Wolken häufig subadiabatisch sind. Gründe für dieses Verhalten sind die Strahlungsabkühlung am Oberrand der Wolke, turbulente Durchmischung in der Wolke und Niederschlagsbildung. Derartige Prozesse reduzieren den Flüssigwassergehalt. Mit Gl. (4.9) erhält man lediglich eine obere Abschätzung für den Flüssigwassergehalt einer Wolke.

Kapitel 5

Sensitivitätsstudien

In diesem Kapitel werden die zur Berechnung der optischen Eigenschaften und des Strahlungstransports entwickelten Modelle überprüft, indem die Sensitivität des 1-dimensionalen Strahlungstransportmodells auf die verschiedenen Extingenten und Eingabeparameter untersucht wird.

In Abschnitt 5.1 werden die unterschiedlichen Lösungsmethoden hinsichtlich ihrer Genauigkeit und Rechenzeit miteinander verglichen. Abschnitt 5.2 behandelt den Einfluss von Ozon und Abschnitt 5.3 den Einfluss von Stickstoffdioxid auf den aktinischen Fluss F_{act} und die Photodissoziationsfrequenzen $J(\text{O}(^1\text{D}))$ und $J(\text{NO}_2)$. In Abschnitt 5.4 werden verschiedene Eigenschaften der Aerosolpartikel hinsichtlich ihrer Auswirkungen auf den aktinischen Fluss untersucht. Abschnitt 5.5 behandelt die Auswirkungen der Wolkentropfen auf das Strahlungsfeld. Abschnitt 5.6 gibt einen kurzen Überblick über weitere Sensitivitätsstudien bezüglich Veränderungen der Bodenalbedo, des Sonnenzenitwinkels und der Verwendung verschiedener spektraler Konstanten, wie dem extraterrestrischen Fluss, der Quantenausbeute und den Absorptionsquerschnitten. Im abschließenden Abschnitt 5.7 werden die Ergebnisse zusammengefasst und bewertet.

5.1 Ein Vergleich der unterschiedlichen Lösungsmethoden

In diesem Abschnitt wird ein Vergleich der aktinischen Flüsse, welche mit den unterschiedlichen Lösungsmethoden in Kap. 3 berechnet wurden, durchgeführt. Dazu wurde der aktinische Fluss einer reinen Rayleigh-Atmosphäre bestimmt. Sowohl die

Ozon- und Stickstoffdioxid-Absorption, als auch die Streuung und Absorption an Aerosolpartikeln und Wolkentropfen wurden vernachlässigt. Die meteorologischen Bedingungen, wie Temperatur T und Druck p , entsprechen den Standardwerten für einen Sommertag in mittleren Breiten (MidLatSum) nach *McClatchey et al.* (1971). Der Sonnenzenitwinkel ϑ_0 beträgt 30° und die Bodenalbedo $A_G = 0.1$ für alle betrachteten Wellenlängen. Die optische Dicke der Rayleigh-Atmosphäre bei $\lambda = 300$ nm war $\tau_{\text{ray}} = 1.2$, bei $\lambda = 370$ nm $\tau_{\text{ray}} = 0.5$ und bei $\lambda = 550$ nm $\tau_{\text{ray}} = 0.1$. Die erste Simulation beruhte auf dem δ -Zwei-Strom-Verfahren. Die zweite Simulation verwendete die Lösungsmethode des δ -Vier-Strom-Verfahrens und die dritte Simulation wurde mit dem exakten Diskrete-Ordinaten-Verfahren durchgeführt. Dabei wurde für die variable Anzahl von Strömen der Wert 16 angenommen, so dass acht Ströme pro Halbraum berechnet wurden.

Zum Vergleich der aktinischen Flüsse wird die prozentuale Abweichung von F_{act} einer bestimmten Simulation zu einem Referenzwert von F_{act} entsprechend der Gleichung:

$$\Delta F_{\text{act}} = \left(\frac{X}{X_{\text{ref}}} - 1 \right) 100\% \quad (5.1)$$

in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ und der Höhe z bestimmt. Der Referenzwert X_{ref} ist dabei F_{act} der Referenzsimulation und X ist F_{act} , für welches die Abweichung zu X_{ref} bestimmt werden soll.

Abb. 5.1 enthält die prozentualen Abweichungen ΔF_{act} . Im linken Teil der Abb. 5.1 entspricht X dem aktinischen Fluss aus dem δ -Zwei-Strom-Verfahren und im rechten Teil der Abbildung ist X der aktinische Fluss berechnet mit dem δ -Vier-Strom-Verfahren. Der Referenzwert X_{ref} ist in beiden Teilen der Abb. 5.1 F_{act} berechnet mit dem exakten Diskrete-Ordinaten-Verfahren.

Die linke Abb. 5.1 zeigt deutlich, dass das δ -Zwei-Strom-Verfahren F_{act} über alle betrachteten Wellenlängen und die gesamte vertikale Ausdehnung unterschätzt. Bei $\lambda = 355$ nm in $z = 8.5$ km Höhe beträgt diese Unterschätzung 11.7%. Die Abweichung des δ -Vier-Strom-Verfahrens zum analytischen Diskrete-Ordinaten-Verfahren ist in weiten Teilen des Feldes kleiner 1%. Die maximale Abweichung beträgt -3.3% bei $\lambda = 520$ nm und $z = 6$ km Höhe.

Tab. 5.1 zeigt einen Vergleich der Rechenzeiten, welche für die unterschiedlichen Lösungsmethoden der Strahlungstransportgleichung aufgewendet werden mussten. Das exakte Diskrete-Ordinaten-Verfahren benötigt die größte Rechenzeit. Das δ -Zwei-Strom-Verfahren benötigt nur 2% der Rechenzeit des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens und damit die geringste Rechenzeit. Das δ -Vier-Strom-Verfahren benötigt

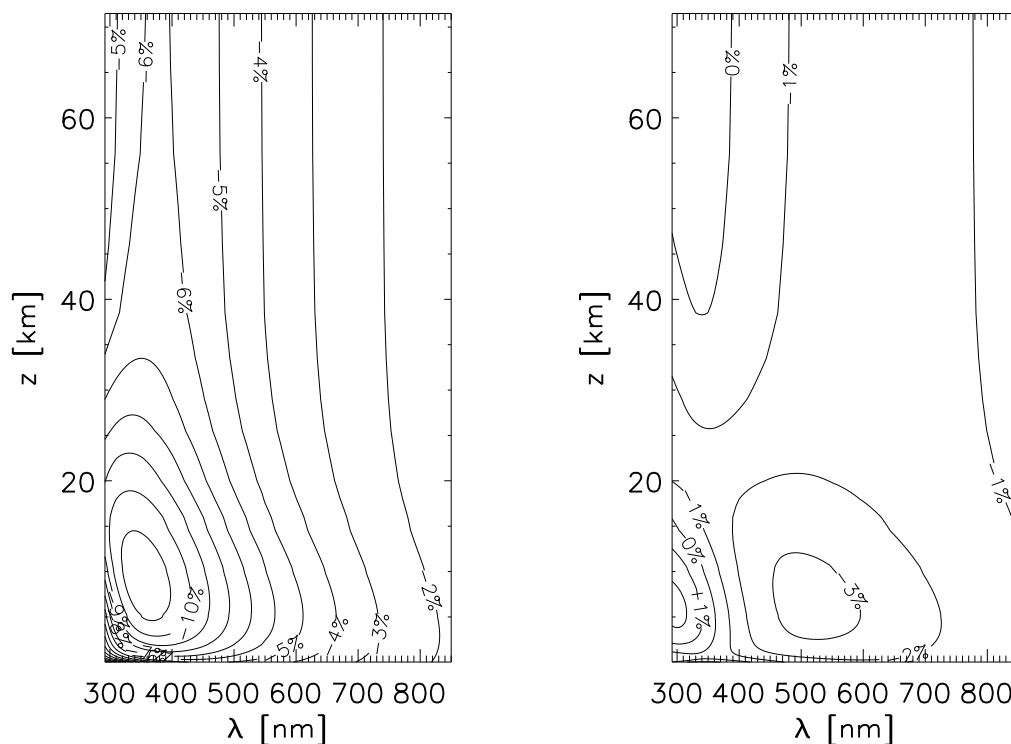


Abbildung 5.1: ΔF_{act} der Simulation mit dem δ -Zwei-Strom-Verfahren (links) und der Simulation mit dem δ -Vier-Strom-Verfahren (rechts) zum Diskrete-Ordinaten-Verfahren in Abhängigkeit von λ und z .

| Verfahren | CPU-Zeit, s | Abweichungen von DISORT, % |
|--------------------------------|----------------|-------------------------------|
| δ -Zwei-Strom-Verfahren | 1.9 | -98 |
| δ -Vier-Strom-Verfahren | 2.3 | -97 |
| Diskrete-Ordinaten-Verfahren | 78.9 | 0 |

Tabelle 5.1: Vergleich der Rechenzeiten der drei Lösungsmethoden.

3% der Rechenzeit des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens und damit nur geringfügig mehr als das δ -Zwei-Strom-Verfahren. Der wesentlich günstigere Rechenaufwand des δ -Vier-Strom-Verfahrens bei nur geringen Einbußen in der Genauigkeit gegenüber dem Diskrete-Ordinaten-Verfahren rechtfertigt die Verwendung des δ -Vier-Strom-Verfahrens. Aus diesem Grund wurden die folgenden Berechnungen, sofern nicht anders vermerkt, grundsätzlich mit dem δ -Vier-Strom-Verfahren durchgeführt.

Weitere Untersuchungen bezüglich der Rechenzeit und Genauigkeit der Verfahren im Vergleich zu den Ergebnissen des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens mit 16 Strömen wurden in *Früh et al.* (2000a) für aerosolbelastete und bewölkte Atmosphären durchgeführt. Verglichen wurden dabei die Profile des $J(\text{NO}_2)$. Für die Rechenzeiten ergaben sich ähnliche Abweichungen zum Rechenaufwand des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens, wie bereits in Tab. 5.1 dargestellt: Das δ -Zwei-Strom-Verfahren benötigt 5% und das δ -Vier-Strom-Verfahren 6% der Rechenzeit des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens.

Der Vergleich der resultierenden $J(\text{NO}_2)$ -Profile des δ -Vier-Strom-Verfahrens mit dem Diskrete-Ordinaten-Verfahren zeigt, dass unabhängig von der optischen Dicke des untersuchten Mediums die Differenz über alle Höhen weniger als 2% beträgt. Das mit dem δ -Zwei-Strom-Verfahren simulierte $J(\text{NO}_2)$ -Profil zeigt dagegen deutlichere Abweichungen von den Ergebnissen des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens (-13% in 2 km Höhe) und ist deshalb weniger geeignet $J(\text{NO}_2)$ -Profile mit ausreichender Genauigkeit zu simulieren.

Ein Vergleich der Lösungsverfahren des 1-dimensionalen SHDOM mit dem Diskrete-Ordinaten-Verfahren in *Trautmann et al.* (1999) zeigte, dass der aktinische Fluss bei $\lambda = 320$ nm in einer unbewölkten Atmosphäre bei verschiedenen Sonnenzenitwinkeln und Bodenalbeden weniger als 0.3% abweicht. Außerdem wurde diese Untersuchung in einer bewölkten Atmosphäre mit einer optischen Dicke von $\tau = 10$ für aktinische Flüsse bei verschiedenen Sonnenzenitwinkeln und bei den Wellenlängen $\lambda = 320$ nm und $\lambda = 370$ nm durchgeführt. Die Abweichungen der beiden Profile aus SHDOM und Diskrete-Ordinaten-Verfahren waren geringer als 2%.

5.2 Der Einfluss von Ozon

Im folgenden Abschnitt soll der Einfluss verschiedener Gesamtozonkonzentrationen und unterschiedlicher Vertikalprofile von Ozon untersucht werden. Als Eingabe für das Modell wurden wiederum Temperatur und Druck entsprechend der Standardatmosphäre für einen Sommertag in mittleren Breiten nach *McClatchey et al.* (1971) bei einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 30^\circ$ und einer Bodenalbedo von $A_G = 0.1$ verwendet.

Die linke Abb. 5.2 zeigt die exponentielle Abnahme der Luftmolekülanzahl N_{Luft} mit der Höhe z . Die Änderung der Steigung der N_{Luft} -Kurve in 13 km definiert den Oberrand der Troposphäre.

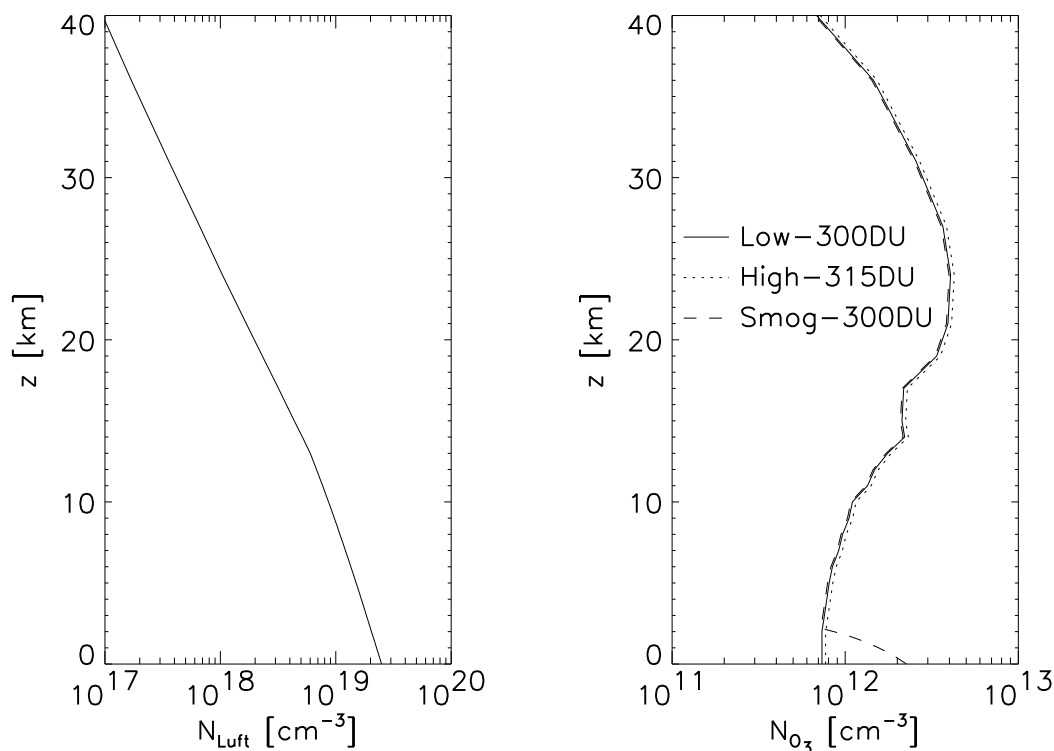


Abbildung 5.2: Vertikalprofil von N_{Luft} (links) und N_{O_3} (rechts) für die drei Fälle *Low-300DU*, *High-315DU* und *Smog-300DU*.

Die rechte Abb. 5.2 zeigt die verschiedenen Vertikalprofile der Ozonkonzentration in Abhängigkeit von der Höhe z . Allen gemeinsam ist das ausgeprägte Maximum der Ozonkonzentration in 17 km bis 30 km Höhe, welches als stratosphärische Ozonschicht bezeichnet wird. Das Ozonprofil der Standardatmosphäre für einen Sommertag in mittleren Breiten nach *McClatchey et al.* (1971) beinhaltet eine Ozonsäule von 308 DU.

Zur Untersuchung der Sensitivität des Strahlungsfeldes auf unterschiedliche Ozonkonzentrationen wurde der Ozongehalt variiert, was zu den drei unterschiedlichen Ozonprofilen, welche in der rechten Abb. 5.2 dargestellt sind, führte. Für den ersten Fall *Low-300DU* (durchgezogene Linie) wurde die Ozonkonzentration so modifiziert, dass sich eine Ozonsäule von 300 DU ergab. Im zweiten Fall *High-315DU* (gepunktete Linie) wurde das Vertikalprofil der Ozonkonzentration um 5% erhöht. Dadurch ergab sich eine Ozonsäule von 315 DU. Im dritten Fall *Smog-300DU* (gestrichelte Linie) wurde das Profil der Ozonkonzentration so verändert, dass eine Ozonsmogsituation resultierte. Dazu wurde die Ozonkonzentration in Bodennähe

von $\rho_{\text{O}_3}(z_0) = 58 \mu\text{g m}^{-3}$ auf $\rho_{\text{O}_3}(z_0) = 180 \mu\text{g m}^{-3}$ ^[1] erhöht. Dies entspricht dem Ozonwarnwert der Bundesregierung. Die troposphärische Ozonsäule nach Gl. (4.7) mit $z_1 = 13 \text{ km}$ wird dadurch von 49 DU auf 54 DU erhöht. In 2 km Höhe nahm die Ozonkonzentration jedoch wieder den Wert des Standardprofils an. Anschließend wurde das gesamte Ozonprofil so skaliert, dass sich als Ozonsäule wiederum der Wert 300 DU ergab. Tab. 5.2 enthält die Modelleingabe der verschiedenen Simulationen

| Simulation | <i>Low-300DU</i> | <i>High-315DU</i> | <i>Smog-300DU</i> | <i>Ozon-308DU</i> |
|--------------------------|-------------------------|-------------------------|--------------------------|--|
| T, p | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° | 30° | 0° - 80°, $\Delta\vartheta_0 = 10^\circ$ |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 300 DU | 315 DU | 300 DU | 308 DU |
| $\rho_{\text{O}_3}(z_0)$ | $58 \mu\text{g m}^{-3}$ | $61 \mu\text{g m}^{-3}$ | $180 \mu\text{g m}^{-3}$ | $60 \mu\text{g m}^{-3}$ |
| NO_2 | - | - | - | - |
| Aerosol | - | - | - | - |
| Wolke | - | - | - | - |

Tabelle 5.2: Modelleingabe zur Untersuchung der Ozonsensitivität.

im Überblick.

Der linke Teil der Abb. 5.3 zeigt die optische Dicke, aufintegriert über die gesamte Säule der Atmosphäre bis zum Boden, sowohl der Rayleigh-Streuung τ_{ray} (durchgezogene Linie) als auch der Ozonabsorption (gepunktete Linie) τ_{O_3} . In dieser Abbildung zeigt sich deutlich, dass τ_{ray} invers proportional zur 4. Potenz der Wellenlänge entsprechend Gl. (1.17) ist und dass τ_{O_3} proportional zum Absorptionsquerschnitt von Ozon (vgl. Abb. 1.4) ist.

Außerdem läßt sich erkennen, dass im Wellenlängenbereich von $\lambda = 292 \text{ nm}$ bis $\lambda = 307 \text{ nm}$ τ_{O_3} und damit der Einfluss der Ozonabsorption auf die Strahlung größer ist als τ_{ray} und somit die Ozonabsorption den Einfluss der Rayleigh-Streuung deutlich übertrifft.

Wegen der logarithmischen Darstellung der Ordinate in Abb. 5.3 sind die Unterschiede von τ_{O_3} für die drei untersuchten Fälle in Abb. 5.3 nicht erkennbar. Sie unterscheiden sich lediglich bei Wellenlängen $\lambda < 340 \text{ nm}$. Bei $\lambda = 300 \text{ nm}$ ist für

^[1] Nach dem BImSchG (Bundesimmissionsschutzgesetz §40 a - e) kann bei Überschreitung des Stundenmittelwertes von $240 \mu\text{g m}^{-3}$ ein Verkehrsverbot ausgerufen werden. Bereits ab $180 \mu\text{g m}^{-3}$ wird die Bevölkerung über eine bestehende erhöhte Ozonbelastung informiert.

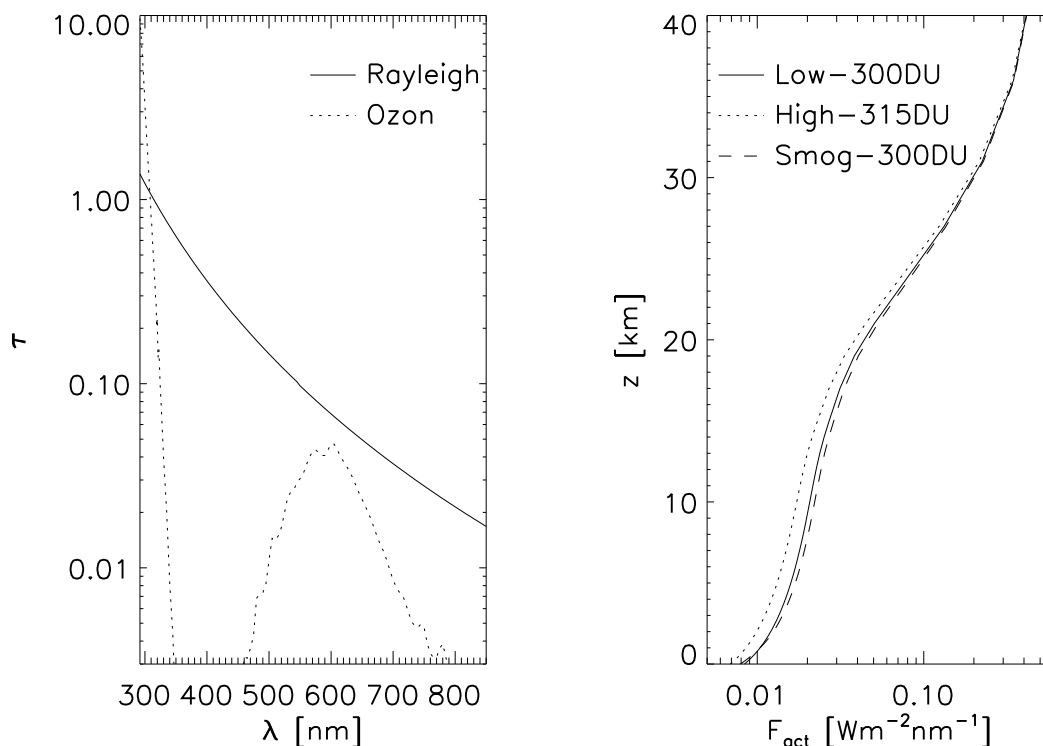


Abbildung 5.3: τ_{Ray} und τ_{O_3} mit logarithmischer Ordinate in Abhängigkeit von λ (links) und das Vertikalprofil von F_{act} bei $\lambda = 300 \text{ nm}$ aus *Low-300DU*, *High-315DU* und *Smog-300DU* (rechts).

die Simulationen *Low-300DU* und *Smog-300DU* die optische Dicke $\tau = 4.5$ und für den Fall *High-315DU* ist $\tau = 4.6$. Der in τ enthaltene Anteil der Rayleigh-Streuung bei $\lambda = 300 \text{ nm}$ ist $\tau_{\text{Ray}} = 1.2$, d.h. bei $\lambda = 300 \text{ nm}$ sind 74% von τ durch die Absorption an Ozonmoleküle verursacht. Bei Wellenlängen $\lambda > 340 \text{ nm}$ überwiegt τ_{Ray} so stark, dass der Einfluss der unterschiedlichen Ozonsäulen vernachlässigt werden kann. Auch bei $\lambda = 600 \text{ nm}$, wo die Differenz zwischen τ_{O_3} und τ_{Ray} gering ist, sind die Abweichungen von F_{act} der unterschiedlichen Simulationen kleiner als 0.3%.

Der rechte Teil der Abb. 5.3 zeigt den resultierenden aktinischen Fluss F_{act} bei 300 nm im Vertikalprofil. Die durchgezogene Linie resultiert für die Simulation *Low-300DU*, die gestrichelte für die Simulation *Smog-300DU* und die gepunktete Linie stellt das Profil für die Simulation *High-315DU* dar. Wegen der hohen Ozonkonzentration in der Stratosphäre (vgl. rechte Abb. 5.2) nimmt F_{act} mit zunehmender Eindringtiefe in die Atmosphäre ab. Besonders stark ist diese Abnahme in der Höhe der stratosphärischen Ozonschicht. Die größere optische Dicke bei der höheren

Ozonkonzentration bewirkt eine stärkere Reduktion von F_{act} im Fall *High-315DU* im Vergleich zu *Low-300DU* unterhalb von 30 km Höhe. F_{act} der Ozonsmog Simulation *Smog-300DU* ist bis auf die bodennahen Schichten größer als F_{act} aus *Low-300DU*.

5.2.1 Spektraler Vergleich von F_{act}

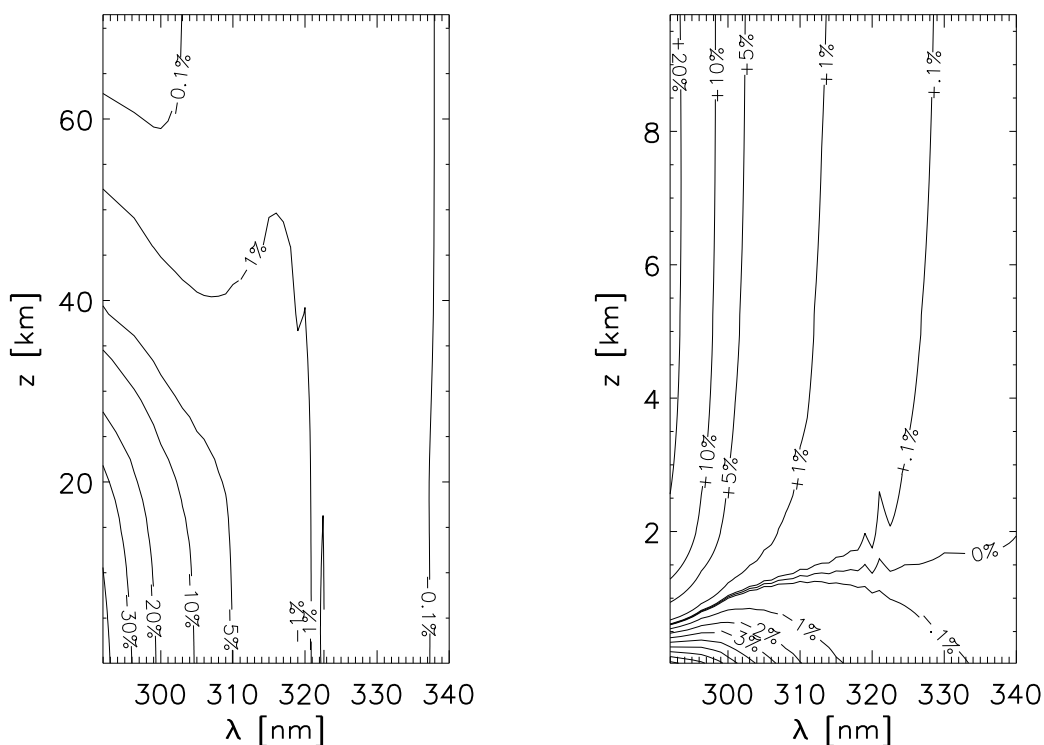


Abbildung 5.4: ΔF_{act} von F_{act} aus *High-315DU* (links) und *Smog-300DU* (rechts) zu F_{act} aus *Low-300DU* in Abhängigkeit von λ und z .

Deutlicher werden die Abweichungen der resultierenden aktinischen Flüsse F_{act} in Abb. 5.4. Der Referenzwert X_{ref} entsprechend Gl. (5.1) ist in beiden Teilen der Abb. 5.4 F_{act} aus *Low-300DU*. Im linken Teil der Abb. 5.4 ist X der aktinische Fluss aus *High-315DU* und im rechten Teil F_{act} aus *Smog-300DU*.

Bei $\lambda > 340$ nm ist $\tau_{\text{O}_3} \ll \tau_{\text{ray}}$. Die Änderung von F_{act} bei $\lambda > 340$ nm ist daher sehr gering. Deshalb ist in Abb. 5.4 lediglich der Wellenlängenbereich zwischen 292 nm und 340 nm dargestellt.

Der linke Teil der Abb. 5.4 beschreibt die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *High-315DU* zu F_{act} aus *Low-300DU*. Dieser Abbildung lässt sich entnehmen, dass

die Veränderungen von F_{act} durch eine Zunahme der Ozonsäule bei kurzen Wellenlängen in Bodennähe am größten sind. Bei der hier dargestellten Zunahme der Ozonsäule um 15 DU (+5%) wird F_{act} bei $\lambda = 292$ nm am Boden um 43% reduziert. Bei $\lambda = 300$ nm beträgt diese Reduktion noch 20% und bei $\lambda = 320$ nm lediglich noch 1%.

Verursacht ist der spektrale Effekt durch die starke Abnahme des Absorptionsquerschnitts von Ozon im Wellenlängenbereich zwischen 292 nm und 340 nm.

Die größere Abweichung mit zunehmender Eindringtiefe in die Atmosphäre ist dadurch zu erklären, dass τ_{O_3} von *High-315DU* im Vergleich zu τ_{O_3} von *Low-300DU* mit zunehmender Eindringtiefe stärker zunimmt. Innerhalb der stratosphärischen Ozonschicht ist die Reduktion von F_{act} aus *High-315DU* im Vergleich zu F_{act} aus *High-300DU* am deutlichsten, da dort die Zunahme der Ozonkonzentration um 5% die größte Auswirkung auf die Absolutanzahl an Molekülen hat.

Der rechte Teil der Abb. 5.4 beschreibt die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *Smog-300DU* zu F_{act} aus *Low-300DU*. Da die Effekte einer Ozonsmogsituation untersucht werden sollen, beschränkt sich die Darstellung der prozentualen Abweichung zur Simulation *Low-300DU* auf die unteren 10 km der Atmosphäre. Oberhalb davon nehmen die Abweichungen ab. Die größten Abweichungen von F_{act} aus *Smog-300DU* zu F_{act} aus *Low-300DU* treten bei den kurzen Wellenlängen auf. Die maximale Abnahme von F_{act} am Boden findet bei $\lambda = 292$ nm statt und beträgt 8%. Die maximale Zunahme findet ebenfalls bei $\lambda = 292$ nm in Höhen oberhalb von 5 km (+24% in 6.5 km Höhe) statt.

Die über die atmosphärische Säule integrierte Anzahl an Ozonmolekülen ist in der Simulation *Smog-300DU* identisch zu der in Simulation *Low-300DU*. Lediglich die vertikale Position ist verändert. So befinden sich im Fall *Smog-300DU* mehr Ozonmoleküle in den untersten 2 km, welche die Ozonsmog-Schicht darstellt. Dafür ist die Molekülanzahl oberhalb von 2 km geringer als im Fall *Low-300DU*. Aus diesem Grund ist bei der Simulation *Smog-300DU* die Absorption durch die Ozonmoleküle oberhalb der Ozonsmog-Schicht geringer und der aktinische Fluss größer als im Fall *Low-300DU*. Innerhalb der Ozonsmog-Schicht wird F_{act} aus *Smog-300DU* wegen der höheren Anzahl an Ozonmolekülen stärker reduziert.

Obwohl die Ozonmolekülanzahl integriert über die gesamte Höhe in *Low-300DU* und *Smog-300DU* identisch ist, ist F_{act} am Boden aus *Smog-300DU* geringer als F_{act} aus *Low-300DU*. Verursacht ist dies zum einen durch die Zunahme des Absorptionsquerschnitts von Ozon mit zunehmender Temperatur. Befinden sich wie in *Smog-300DU*

mehr Ozonmoleküle im unteren und wärmeren Teil der Troposphäre so ist die Ozonabsorption effektiver. Zum anderen ist auch die Anzahl an Luftmolekülen im unteren Bereich der Troposphäre höher. Aus diesem Grund findet im unteren Teil der Atmosphäre mehr Streuung statt als im oberen Teil. Der Photonenweg wird dadurch im unteren Teil stärker verlängert. Die Wahrscheinlichkeit der Absorption durch Ozonmoleküle ist dadurch höher als im Falle, wenn sich die Ozonmoleküle im oberen Teil der Atmosphäre befinden würden.

Die 0%-Isolinie liegt bei $\lambda = 292$ nm in 700 m Höhe. Mit zunehmender Wellenlängen steigt die Höhe der 0%-Isolinie. Bei $\lambda = 340$ nm befindet sie sich in 2 km Höhe. Der Betrag der Abweichungen von F_{act} aus *Smog-300DU* zu F_{act} aus *Low-300DU* wird mit zunehmendem λ geringer.

Bei einer Erhöhung der Bodenkonzentration auf $240 \mu\text{g m}^{-3}$ bei konstanter Ozonsäule von 300 DU bleibt die Lage der 0%-Isolinie konstant. Die Beträge der Abweichung werden jedoch größer. Die maximale Erhöhung bei $\lambda = 292$ nm beträgt 38% in 6.5 km Höhe und die maximale Verminderung am Boden 11%.

5.2.2 Vergleich der Photodissoziationsfrequenzen

Zur Veranschaulichung der Veränderungen der Photodissoziationsfrequenz von $\text{O}(^1\text{D})$ bei Veränderung des Ozongehaltes der Atmosphäre ist im oberen Teil der Abb. 5.5 (links) das Vertikalprofil von $J(\text{O}(^1\text{D}))$ für die unterschiedlichen Fälle *Low-300DU* (durchgezogene Linie), *High-315DU* (gepunktete Linie) und *Smog-300DU* (gestrichelte Linie) dargestellt. Die obere, rechte Abb. 5.5 zeigt die prozentualen Abweichungen von $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *High-315DU* und *Smog-300DU* zu $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *Low-300DU*.

Die über das gesamte Vertikalprofil gleichmäßige Erhöhung der Ozonkonzentration um 5% im Fall *High-315DU* führt zu einer vertikal nahezu konstanten Abnahme des $J(\text{O}(^1\text{D}))$ um 7% am Boden und 8% in 10 km Höhe.

Bei der Ozonsmogsimulation *Smog-300DU* ist $J(\text{O}(^1\text{D}))$ oberhalb von 1.2 km größer als im Fall *Low-300DU*. In 10 km Höhe beträgt die Erhöhung 3%. Unterhalb von 1.2 km ist $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *Smog-300DU* im Vergleich zu $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *Low-300DU* reduziert. Am Boden beträgt die Verringerung 2.6%.

Bei einer weiteren Erhöhung der Bodenkonzentration auf $\rho_{\text{O}_3}(z_0) = 240 \mu\text{g m}^{-3}$ mit einer Ozonsäule von 300 DU wird $J(\text{O}(^1\text{D}))$ am Boden um 4% vermindert und in 10 km Höhe im Vergleich zu $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *Low-300DU* um 5% erhöht.

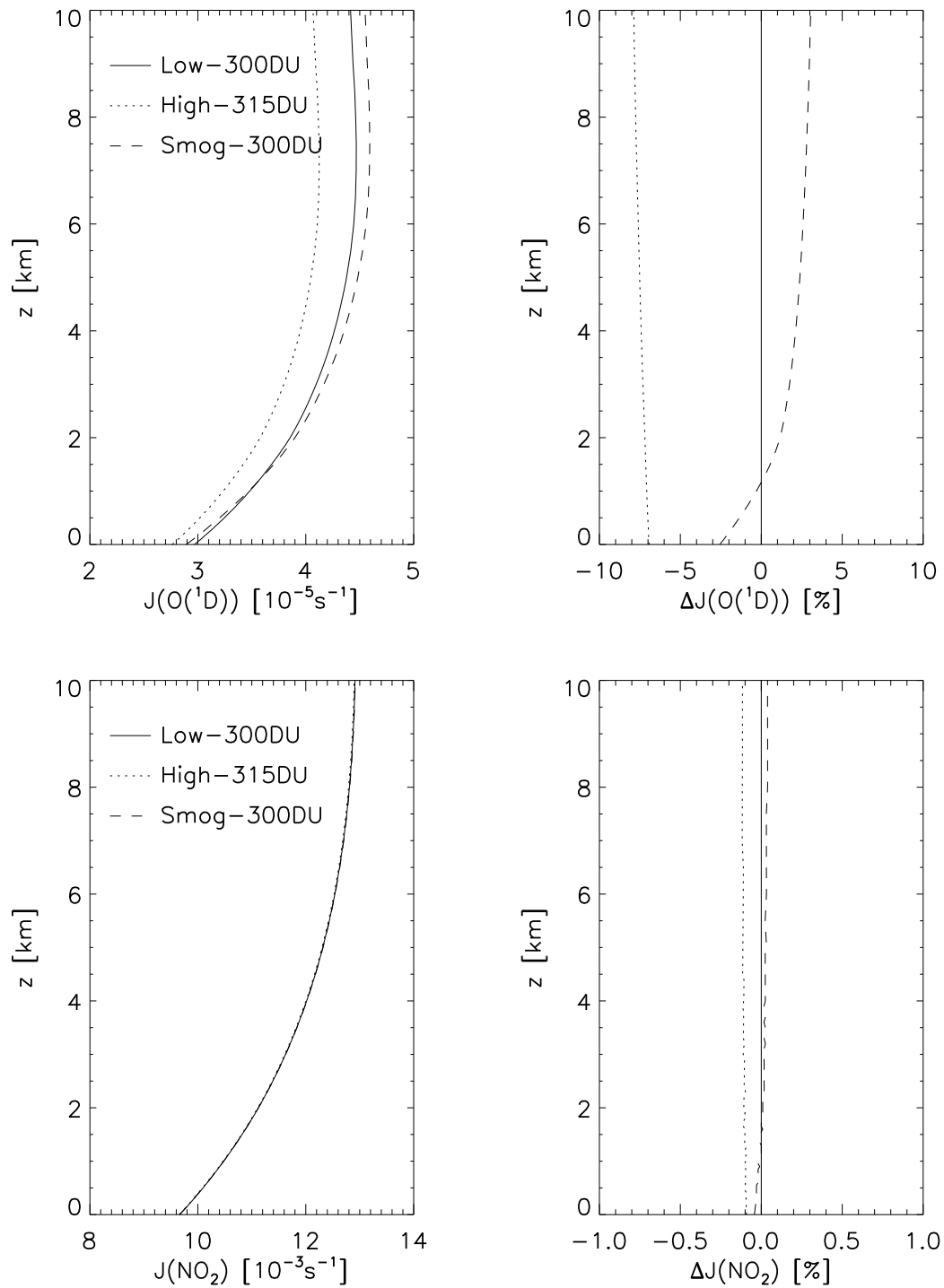


Abbildung 5.5: Oben: $J(O(^1D))$ aus *Low-300DU*, *High-315DU* und *Smog-300DU* und deren prozentuale Abweichung von $J(O(^1D))$ aus *Low-300DU*. Unten: $J(NO_2)$ aus *Low-300DU*, *High-315DU* und *Smog-300DU* und deren prozentuale Abweichung von $J(NO_2)$ aus *Low-300DU*.

Der untere Teil der Abb. 5.5 enthält $J(\text{NO}_2)$ der unterschiedlichen Simulationen. Es wird deutlich, dass $J(\text{NO}_2)$ nur wenig auf Änderungen der Ozonkonzentration reagiert. $J(\text{NO}_2)$ aus *High-315DU* ist lediglich um 0.1% geringer als $J(\text{NO}_2)$ aus *Low-300DU*. $J(\text{NO}_2)$ aus *Smog-300DU* ist in 10 km Höhe um 0.04% erhöht und am Boden um 0.04% verringert. Die geringen Abweichungen sind auf die geringe Sensitivität des $J(\text{NO}_2)$ auf F_{act} bei $\lambda < 340$ nm zurückzuführen.

5.2.3 Auswirkung des Sonnenzenitwinkels am Boden

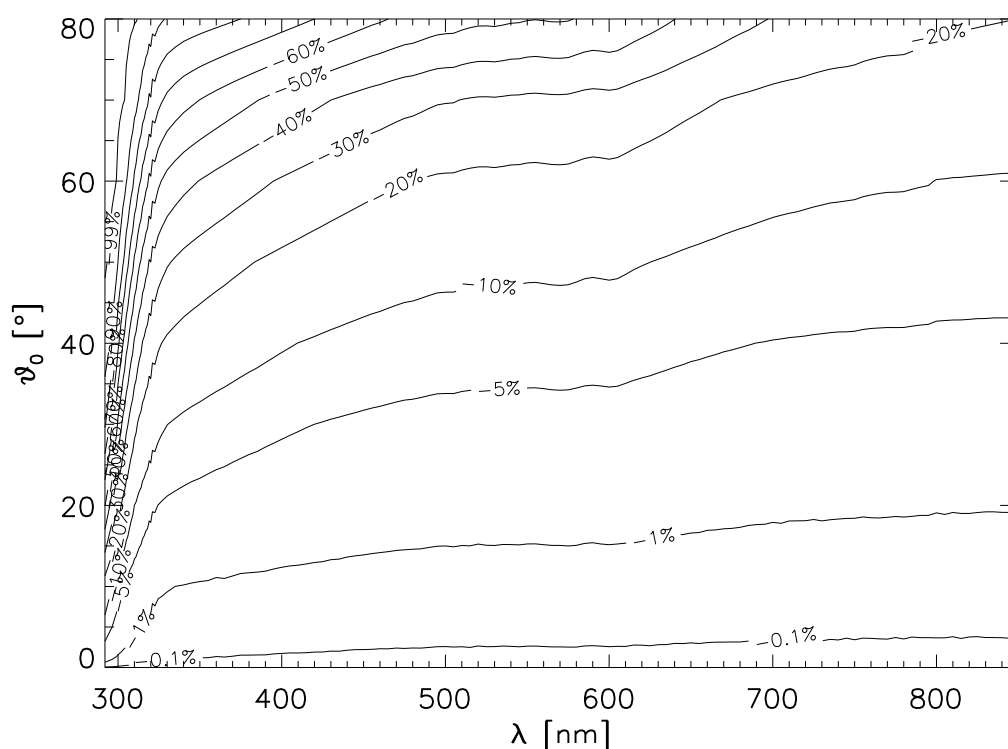


Abbildung 5.6: Prozentuale Abweichung von F_{act} aus *Ozon-308DU* am Boden mit variierendem ϑ_0 zu F_{act} aus *Ozon-308DU* mit $\vartheta_0 = 0^\circ$ in Abhängigkeit von λ und ϑ_0 .

Abb. 5.6 zeigt den Einfluss des Sonnenzenitwinkels ϑ_0 auf den aktinischen Fluss am Boden. Dargestellt ist die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses am Boden bei den Sonnenzenitwinkeln ϑ_0 von 0° bis 80° in 10° -Schritten aus *Ozon-308DU* zu F_{act} aus *Ozon-308DU* bei $\vartheta_0 = 0^\circ$.

Mit zunehmendem ϑ_0 nimmt der spektrale aktinische Fluss ab, da der größere Sonnenzenitwinkel einen längeren Weg für die Photonen durch die Atmosphäre verur-

sacht. Die effektive optische Dicke entlang des Lichtweges τ_s , welche den Sonnenzenitwinkel ϑ_0 berücksichtigt, berechnet sich in 1-dimensionalen Medien wie folgt:

$$\tau_{s,1D} = \frac{\tau}{\cos \vartheta_0}. \quad (5.2)$$

Gl. (5.2) macht deutlich, dass die effektive optische Dicke bei zunehmendem Sonnenzenitwinkel größer wird und damit die Transmission verringert.

Bei $\lambda < 330$ nm nimmt F_{act} sehr stark ab. Dies liegt darin begründet, dass in diesem Wellenlängenbereich der Absorptionsquerschnitt von Ozon sehr groß ist. Zusammen mit dem größeren $\tau_{s,1D}$ führt dies zu einer starken Reduktion von F_{act} in diesem Wellenlängenbereich. Bei $\lambda = 292$ nm und $\vartheta_0 > 50^\circ$ ist F_{act} bereits um mehr als 99% reduziert im Vergleich zum F_{act} bei $\vartheta_0 = 0^\circ$. Bei $\lambda = 330$ nm und $\vartheta_0 = 80^\circ$ ist F_{act} um 90% vermindert. Bei $\lambda > 330$ nm ist die Abnahme wesentlich geringer. Bei $\lambda = 850$ nm und $\vartheta_0 = 80^\circ$ beträgt die Verminderung von F_{act} 20% im Vergleich zu F_{act} bei $\vartheta_0 = 0^\circ$.

5.3 Der Einfluss von Stickstoffdioxid

Zur Untersuchung der Sensitivität des Strahlungstransportmodells auf die Absorption durch NO_2 wurden als Eingabe für das Modell Temperatur und Druck entsprechend der Standardatmosphäre für einen Sommertag in mittleren Breiten (*McClatchey et al.*, 1971) bei einem Sonnenzenitwinkel von 60° und einer Bodenalbedo von 10% bei unterschiedlichen NO_2 -Konzentrationen verwendet.

Die linke Abb. 5.7 zeigt das Vertikalprofil der Anzahl der NO_2 -Moleküle N_{NO_2} , wobei sich die gepunktete Linie auf das Standardprofil von *McClatchey et al.* (1971) mit einer NO_2 -Konzentration am Boden von $0.044 \mu\text{g m}^{-3}$ bezieht. Dieser Fall wird im Folgenden mit *Low-NO2* bezeichnet. Die gestrichelte Linie beschreibt eine Situation, bei der die NO_2 -Konzentration am Boden auf $10 \mu\text{g m}^{-3}$ [2] erhöht wurde. Dieser Fall wird im Folgenden mit *High-NO2* bezeichnet. Verglichen werden die beiden Fälle mit der Simulation *Ozon-308DU*, bei der die NO_2 -Absorption vollständig vernachlässigt wurde. Tab. 5.3 enthält die Modelleingabe der verschiedenen Simulationen im Überblick.

[2] Die 23. BImSchV (Bundesimmissionsschutzverordnung) sieht ein 98-Perzentil über ein Jahr von $160 \mu\text{g m}^{-3}$ vor. Das 98-Perzentil wird auch Kurzzeitwert oder IW2-Wert (TA Luft) genannt und entspricht demjenigen Emissionwert, der in 98% aller halben Stunden des Jahres unterschritten wird. Der Grenzwert für die Jahresmittelkonzentration beträgt $80 \mu\text{g m}^{-3}$ (TA Luft).

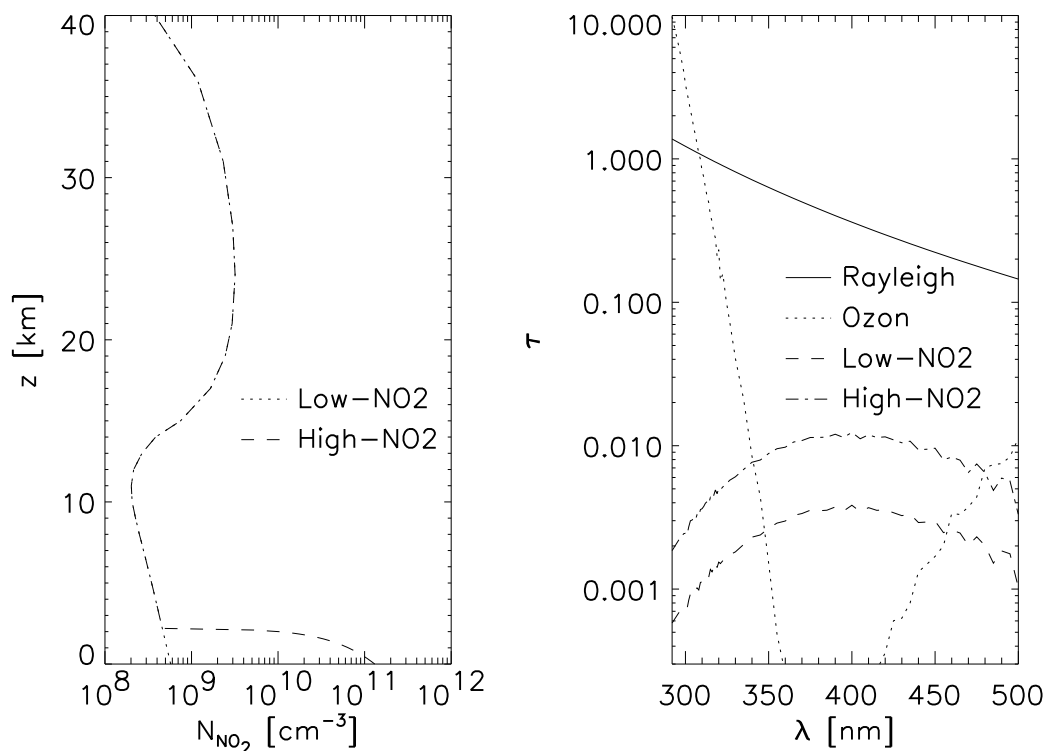


Abbildung 5.7: Vertikalprofil von N_{NO_2} (links) und τ_{ray} , τ_{O_3} und τ_{NO_2} mit logarithmischer Ordinate gegen λ (rechts).

| Simulation | <i>Low-NO2</i> | <i>High-NO2</i> |
|---------------------------|----------------------------|-------------------------|
| T, p | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 60° | 60° |
| A_G | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU |
| $\rho_{\text{NO}_2}(z_0)$ | $0.044 \mu\text{g m}^{-3}$ | $10 \mu\text{g m}^{-3}$ |
| Aerosol | - | - |
| Wolke | - | - |

Tabelle 5.3: Modelleingabe zur Untersuchung der NO_2 -Sensitivität.

Der rechte Teil der Abb. 5.7 zeigt neben τ_{ray} und τ_{O_3} die optische Dicke der NO_2 -Absorption τ_{NO_2} am Boden sowohl für *Low-NO2* (gestrichelte Linie) als auch für *High-NO2* (strichpunktierte Linie). τ_{NO_2} hat sein Maximum bei $\lambda = 400$ nm. In *Low-NO2* beträgt $\tau_{\text{NO}_2} = 0.0038$ und in *High-NO2* $\tau_{\text{NO}_2} = 0.012$. Im Vergleich dazu

gilt bei $\lambda = 400 \text{ nm}$ $\tau_{\text{ray}} = 0.36$ und $\tau_{\text{O}_3} = 0$. Der Einfluss der Rayleigh-Streuung ist somit bedeutend größer als der Einfluss der Absorption durch Stickstoffdioxid.

5.3.1 Spektraler Vergleich von F_{act}

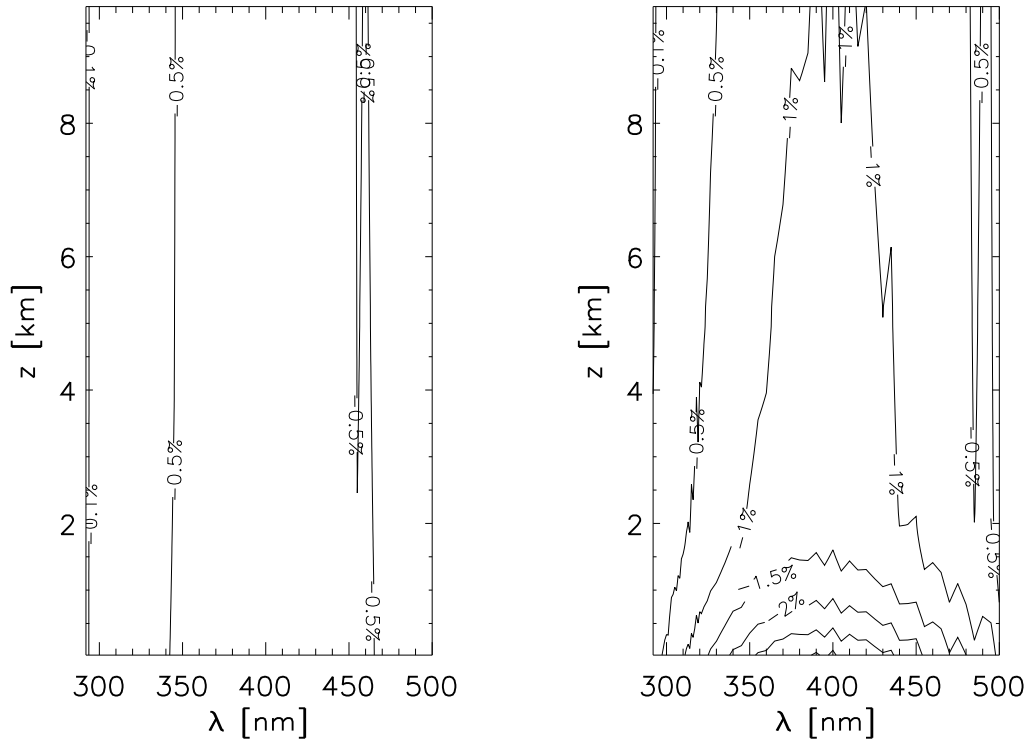


Abbildung 5.8: ΔF_{act} von F_{act} aus *Low-NO2* (links) und F_{act} aus *High-NO2* (rechts) zu F_{act} aus *Ozon-308DU* in Abhängigkeit von λ und z .

Die linke Abb. 5.8 zeigt die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses ΔF_{act} entsprechend Gl. (5.1). Der Wert X ist dabei F_{act} der Simulation *Low-NO2* und der Referenzwert X_{ref} ist F_{act} aus *Ozon-308DU*. Die maximale Abweichung beträgt -0.8% bei $\lambda = 400 \text{ nm}$. Die Auswirkung der atmosphärischen Standard- NO_2 -Konzentration (*McClatchey et al.*, 1971) bei $\vartheta_0 = 60^\circ$ ist also vernachlässigbar gering.

Im rechten Teil der Abb. 5.8 ist die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *High-NO2* zu F_{act} aus *Ozon-308DU* dargestellt. Die maximale Abweichung beträgt hier -3.1% bei $\lambda = 400 \text{ nm}$ am Boden. Bei Vernachlässigung der NO_2 -Absorption tritt damit eine systematische Überschätzung des aktinischen Flusses auf. Im Wellenlängenbereich zwischen 350 nm und 450 nm sind die Auswirkungen des NO_2 am deutlichsten.

5.3.2 Vergleich der Photodissoziationsfrequenzen

Der obere Teil in Abb. 5.9 macht die Auswirkungen der NO_2 -Absorption auf $J(\text{NO}_2)$ deutlich. Dargestellt sind in der linken, oberen Abbildung die Absolutwerte des Vertikalprofils von $J(\text{NO}_2)$ aus der Simulation unter Vernachlässigung der NO_2 -Konzentration *Ozon-308DU* (durchgezogene Linie), aus *Low-NO2* (gepunktete Linie) und aus *High-NO2* (gestrichelte Linie). Die rechte, obere Abb. 5.9 enthält die prozentualen Abweichungen von $J(\text{NO}_2)$ aus *Low-NO2* und *High-NO2* zu $J(\text{NO}_2)$ aus *Ozon-308DU*.

Es zeigt sich, dass $J(\text{NO}_2)$ aus *Low-NO2* am Boden nur um -0.7% von $J(\text{NO}_2)$ aus *Ozon-308DU* abweicht. Bei der Simulation *High-NO2* ist $J(\text{NO}_2)$ am Boden um 2.7% reduziert. Wiederum bleibt festzustellen, dass die Auswirkungen der Standard- NO_2 -Konzentration bei $\vartheta_0 = 60^\circ$ sehr gering sind. Eine erhöhte NO_2 -Konzentration, wie sie in einem Ballungszentrum häufiger vorkommt, führt jedoch bereits zur Reduktion von $J(\text{NO}_2)$ am Boden um nahezu 3%.

Der untere Teil der Abb. 5.9 zeigt $J(\text{O}(^1\text{D}))$ analog zum oberen Teil. $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *Low-NO2* ist in Bodennähe um 0.3% geringer und $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *High-NO2* ist um 1.1% geringer als $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *Ozon-308DU*.

Die Veränderung der NO_2 -Konzentration hat geringere Auswirkungen auf $J(\text{O}(^1\text{D}))$ im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$, da die Verminderung von F_{act} durch die NO_2 -Absorption in einem Wellenlängenbereich stattfindet, welcher für $J(\text{O}(^1\text{D}))$ weniger relevant ist als für $J(\text{NO}_2)$.

5.3.3 Auswirkung des NO_2 am Boden bei Variation des Sonnenzenitwinkels

In Abb. 5.10 ist die prozentuale Abweichung am Boden von F_{act} aus *Low-NO2* zu F_{act} aus *Ozon-308DU* bei unterschiedlichen Sonnenzenitwinkeln dargestellt. Dazu wurden für *Low-NO2* neun Simulationen mit einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 0^\circ$ bis $\vartheta_0 = 80^\circ$ in 10° -Schritten durchgeführt. Diese wurden mit F_{act} der Simulationen ohne Berücksichtigung der NO_2 -Konzentration *Ozon-308DU* verglichen. Dadurch ergibt sich der Einfluss der NO_2 -Absorption bei verschiedenen Sonnenzenitwinkeln. Wegen der Zunahme des Weges für die Photonen durch die Atmosphäre bei zunehmendem Sonnenzenitwinkel, wird auch die Auswirkung der NO_2 -Absorption mit zunehmendem ϑ_0 größer. Bei $\vartheta_0 < 40^\circ$ wird der aktinische Fluss am Boden durch

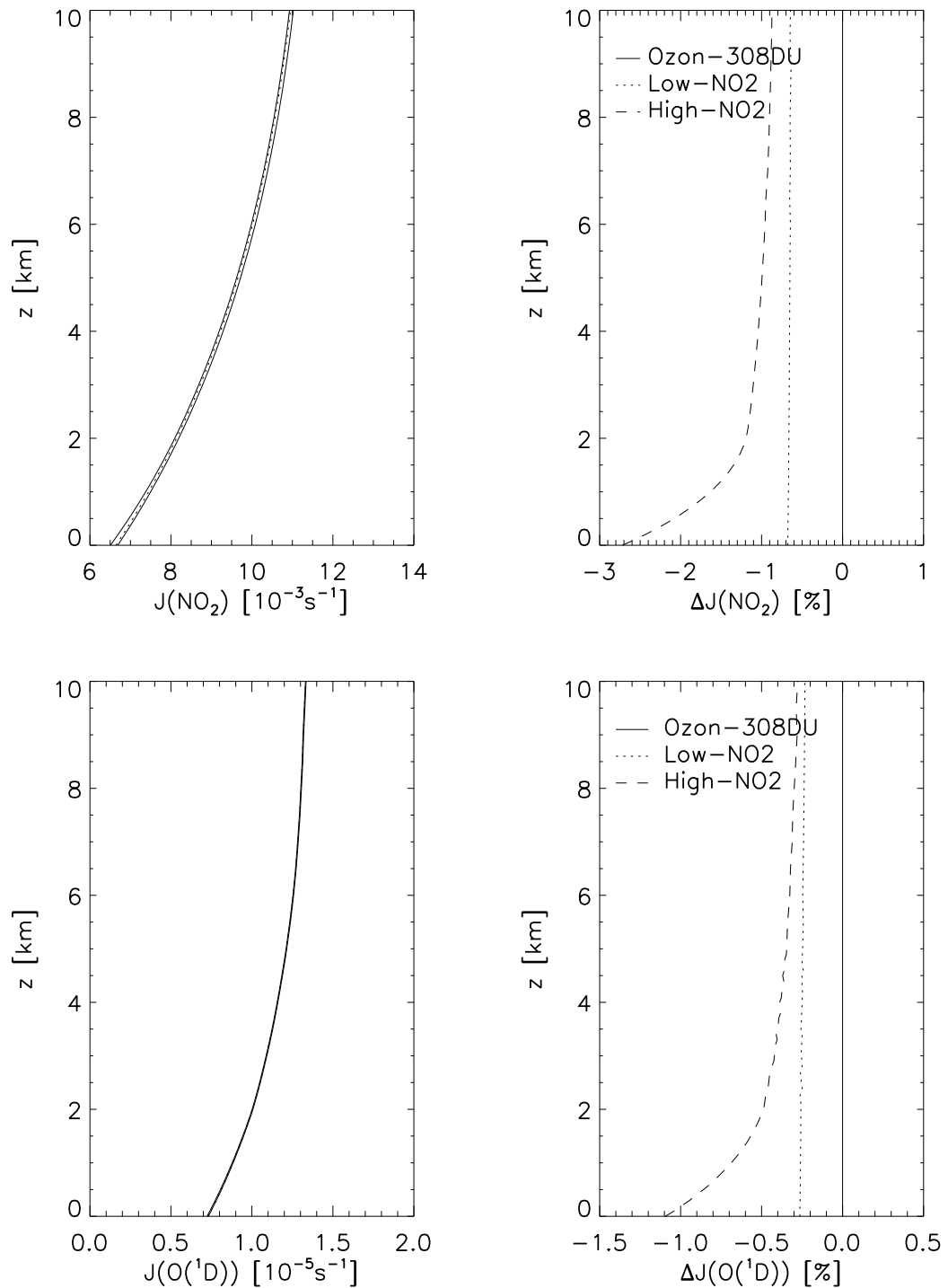


Abbildung 5.9: Oben: $J(\text{NO}_2)$ aus *Ozon-308DU*, *Low-NO2* und *High-NO2* und deren prozentuale Abweichung von $J(\text{NO}_2)$ aus *Ozon-308DU*. Unten: $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *Ozon-308DU*, *Low-NO2* und *High-NO2* und deren prozentuale Abweichung von $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *Ozon-308DU*.

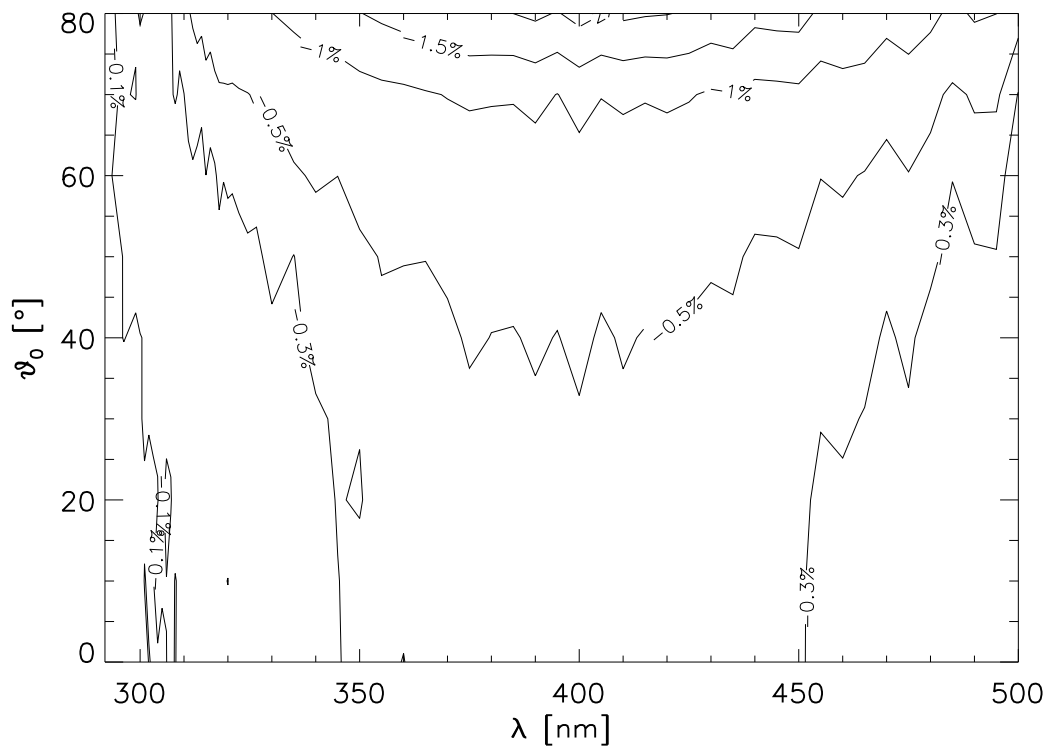


Abbildung 5.10: Prozentuale Abweichung von F_{act} aus *Low-NO2* am Boden zu F_{act} aus *Ozon-308DU* in Abhängigkeit von ϑ_0 und λ .

die NO_2 -Absorption um weniger als 0.5% reduziert und ist damit vernachlässigbar. Aus diesem Grund wurden auch die Sensitivitätsstudien für $\vartheta_0 = 60^\circ$ ausgeführt und nicht wie bei den anderen Fällen mit $\vartheta_0 = 30^\circ$. Da das Maximum des NO_2 -Absorptionsquerschnittes bei $\lambda = 400 \text{ nm}$ liegt, ist auch die Verminderung des aktinischen Flusses im Wellenlängenbereich zwischen 350 nm und 450 nm am größten. Die maximale Verminderung des F_{act} findet bei dem größten dargestellten Sonnenzenitwinkel $\vartheta_0 = 80^\circ$ und $\lambda = 400 \text{ nm}$ statt und beträgt -2%.

5.4 Der Einfluss der Aerosolpartikel

Der Aerosoleinfluss auf das Strahlungsfeld ist sehr stark von der Aerosolanzahlkonzentration, der Aerosolgrößenverteilung, aber auch der chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel abhängig. Um den Einfluss der einzelnen Parameter getrennt zu untersuchen, wurden verschiedene Simulationen durchgeführt, bei denen

jeweils ein Parameter unter Beibehaltung der übrigen Aerosolparameter verändert wurde.

5.4.1 Die Auswirkung von ruralem und urbanem Aerosol

Zunächst soll der Einfluss von urbanem und ruralem Aerosol auf den aktinischen Fluss durch einen Vergleich mit F_{act} einer mit Aerosol unbelasteten Atmosphäre untersucht werden. Dazu wurden die beiden Simulationen *JR* und *JU* durchgeführt und mit den Ergebnissen aus *Ozon-308DU* bei einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 30^\circ$ verglichen. Die Aerosoleigenschaften von *JR* und *JU* sind in Abschnitt 2.2.1 beschrieben. Das Feuchtwachstum der Aerosolpartikel wurde mittels der Köhlergleichung Gl. (2.14) berücksichtigt. Dabei wurde das Feuchte-Profil aus *McClatchey et al.* (1971) mit einem Bodenwert von $rh(z_0) = 76\%$ verwendet. Einen Überblick über

| Simulation | <i>JR</i> | <i>JU</i> |
|---------------|------------|------------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - |
| Aerosol | <i>JR</i> | <i>JU</i> |
| Wolke | - | - |

Tabelle 5.4: Modelleingabe zur Untersuchung der Aerosolsensitivität. Die Definitionen von *JR* und *JU* befinden sich in Abschnitt 2.2.1.

die verwendeten Eingabedaten des Modells gibt Tab. 5.4.

Abb. 5.11 zeigt die optische Dicke der einzelnen Extingenten. Die gestrichelte Linie beschreibt die optische Dicke des Aerosols τ_{aer} der Simulation *JR*. Die strichpunktierte Linie bezieht sich auf die Simulation *JU*. Die durchgezogene und die gepunktete Linien sind die optischen Dicken der Rayleigh-Streuung τ_{ray} und der Ozonabsorption τ_{O_3} .

Es zeigt sich, dass die optische Dicke des Aerosols τ_{aer} mit zunehmender Wellenlänge abnimmt. In *JR* wird τ_{aer} von 0.76 bei $\lambda = 292 \text{ nm}$ um 58% auf $\tau_{\text{aer}} = 0.32$ bei $\lambda = 850 \text{ nm}$ reduziert. Das urbane Aerosol führt zu $\tau_{\text{aer}} = 0.42$ bei $\lambda = 292 \text{ nm}$ und $\tau_{\text{aer}} = 0.15$ bei $\lambda = 850 \text{ nm}$, was einer Reduktion der optischen Dicke um 64% entspricht. *JU* führt somit zu einer stärkeren Wellenlängenabhängigkeit.

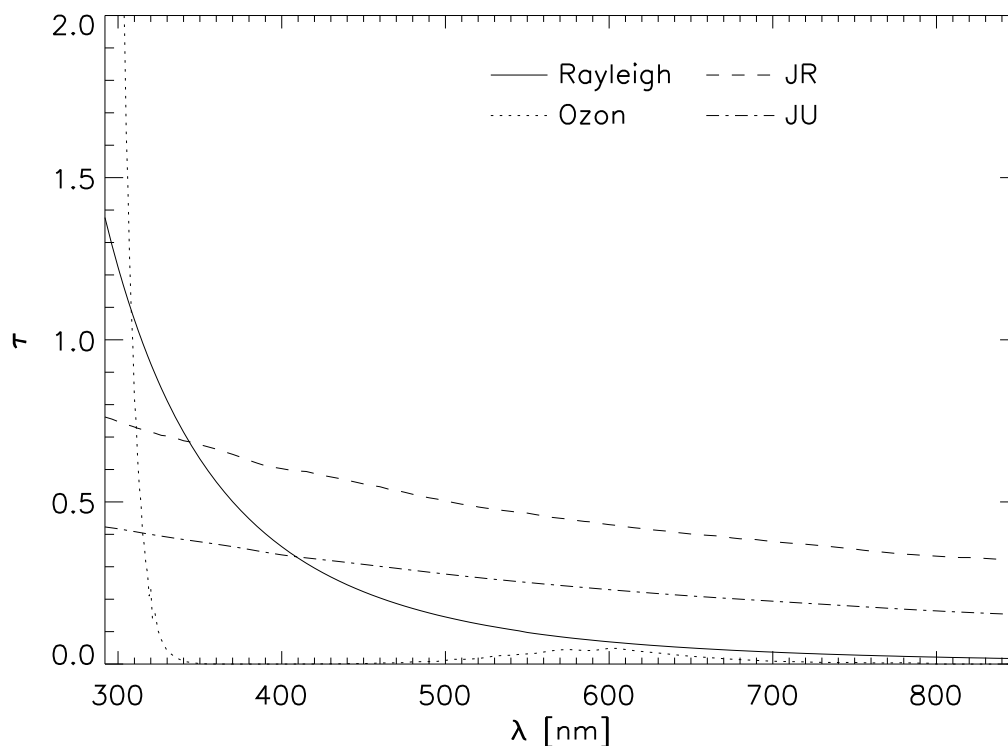


Abbildung 5.11: τ_{ray} , τ_{O_3} und τ_{aer} in Abhängigkeit von λ für die Simulationen *JR* und *JU*.

Bei $\lambda < 345$ nm ist τ_{aer} des ruralen Aerosols und bei $\lambda < 410$ nm ist τ_{aer} des urbanen Aerosols kleiner als τ_{ray} . Die Auswirkungen der Rayleigh-Streuung sind daher in diesem Wellenlängenbereich größer als die Auswirkungen des Aerosols.

Der linke Teil der Abb. 5.12 zeigt die prozentuale Abweichung ΔF_{act} von F_{act} aus *JR* zu F_{act} der aerosolfreien Simulation *Ozon-308DU*. Damit lässt sich der Einfluss des ruralen Aerosols auf F_{act} untersuchen. Die maximale Verminderung des aktinischen Flusses um 14.7% auf Grund des Einflusses ruralen Aerosols erfolgt in Bodennähe bei $\lambda = 310$ nm. Die maximale Erhöhung von F_{act} erfolgt in 1.6 km Höhe bei $\lambda = 425$ nm und beträgt 10.7%.

Die 0%-Isolinie nähert sich mit zunehmendem λ der Erdoberfläche. Oberhalb der 0%-Isolinie ist F_{act} aus *JR* im Vergleich zu F_{act} aus *Ozon-308DU* erhöht und unterhalb vermindert. Bei $\lambda = 292$ nm verläuft die 0%-Isolinie in 1 km Höhe. Bei $\lambda = 300$ nm nur noch in 500 m und bei 430 nm in 100 m Höhe. Bei $\lambda = 470$ nm erreicht die 0%-Isolinie den Erdboden.

Der rechte Teil der Abb. 5.12 bezieht sich auf die prozentuale Abweichung ΔF_{act} von

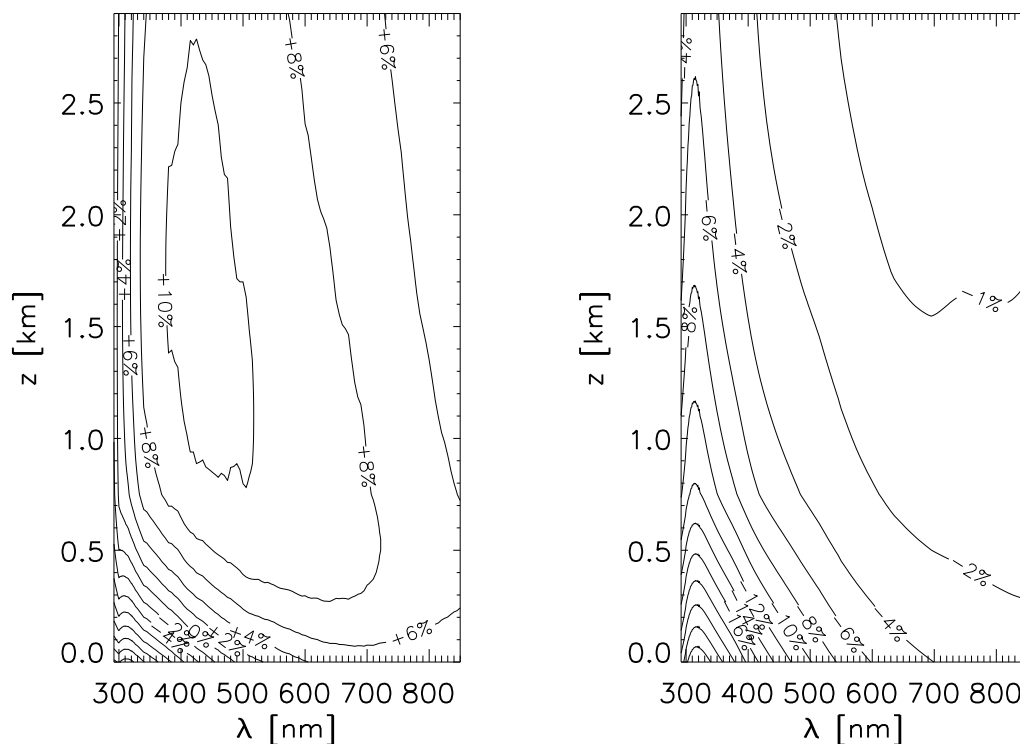


Abbildung 5.12: ΔF_{act} von F_{act} aus *JR* (links) und *JU* (rechts) zu F_{act} aus *Ozon-308DU* in Abhängigkeit von λ und z .

F_{act} aus *JU* zu F_{act} der aerosolfreien Simulation *Ozon-308DU*. Unter dem Einfluss von urbanem Aerosol wird F_{act} für alle Wellenlängen über die gesamte Höhe der Atmosphäre reduziert. Die maximale Verminderung des aktinischen Flusses um 25.7% erfolgt am Boden bei $\lambda = 319$ nm.

Eine Zunahme von F_{act} oberhalb der Aerosolschicht findet nur bei ruralem Aerosoleinfluss statt. Urbanes Aerosol dagegen reduziert F_{act} in allen Höhen. Die Abnahme des aktinischen Flusses in Bodennähe ist bei urbanem Aerosoleinfluss größer als bei ruralem. Untersuchen lässt sich dieser Effekt an Hand von F_{act} aufgespalten in den direkten und diffusen Anteil der Strahlung. Da die atmosphärischen Aerosolpartikel zusätzliche Streukörper in der Atmosphäre sind, wird die Anzahl der Streuprozesse erhöht. Das wiederum verursacht zum einen eine Verminderung des direkten Anteils der Strahlung und zum anderen eine Erhöhung des diffusen Anteils der Strahlung. Der obere Teil der Abb. 5.13 zeigt F_{act} am Boden aufgespalten in den direkten Anteil $F_{act,dir}$ (links) und den diffusen Anteil $F_{act,diff}$ (rechts) für *Ozon-308DU*, *JR* und *JU* in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ . Der untere Teil der Abb. 5.13 verdeutlicht die

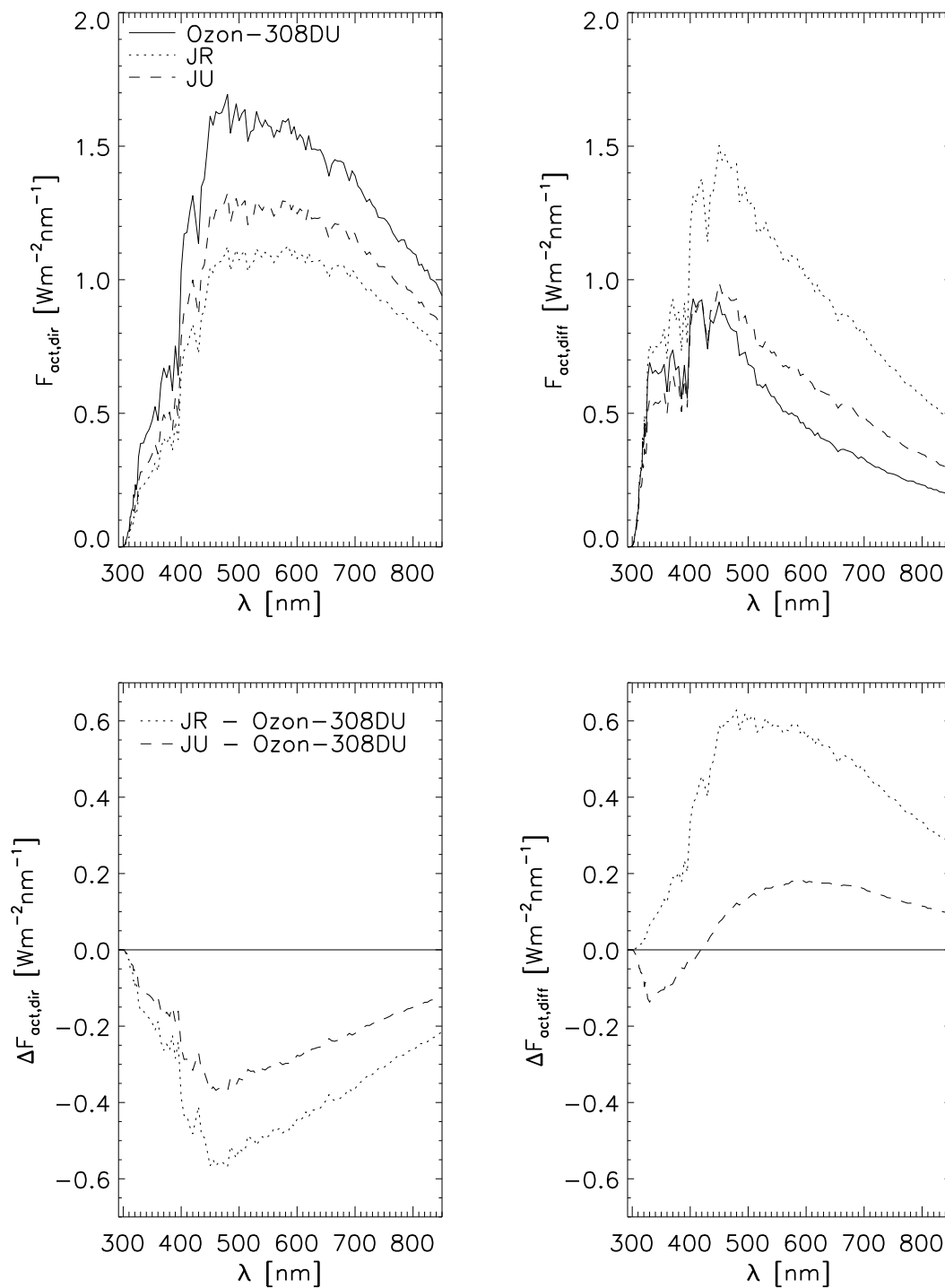


Abbildung 5.13: Oben: F_{act} am Boden aufgespalten in $F_{\text{act,dir}}$ (links) und $F_{\text{act,diff}}$ (rechts) von *Ozon-308DU*, *JR* und *JU* in Abhängigkeit von λ . Unten: Spektrale Differenzen von $F_{\text{act,dir}}$ (links) und $F_{\text{act,diff}}$ (rechts) zwischen *JR* und *JU* zu *Ozon-308DU*.

Abweichungen von $F_{\text{act,dir}}$ (links) und $F_{\text{act,diff}}$ (rechts) aus *JR* und *JU* zu $F_{\text{act,dir}}$ und $F_{\text{act,diff}}$ aus *Ozon-308DU* durch Darstellung der spektralen Differenzen am Boden. Besonders deutlich ist die Verminderung des direkten Anteils im Wellenlängenbereich zwischen 400 nm und 500 nm. In diesem Wellenlängenbereich ist sowohl die Ozonabsorption als auch die Rayleigh-Streuung im Vergleich zur Extinktion an Aerosolpartikeln gering. Wegen der höheren optischen Dicke des ruralen Aerosols ist die Verminderung von $F_{\text{act,dir}}$ des ruralen Aerosols größer als die des urbanen Aerosols. Unter Einfluss von ruralem Aerosol wird der diffuse Anteil der Strahlung durch die größere Anzahl an Streuprozessen über den gesamten dargestellten Spektralbereich erhöht. Die Reduktion von $F_{\text{act,dir}}$ ist bei $\lambda < 440$ nm größer als die Erhöhung von $F_{\text{act,diff}}$. F_{act} wird deshalb in diesem Wellenlängenbereich reduziert. Bei $\lambda > 440$ nm jedoch wird $F_{\text{act,diff}}$ stärker erhöht als $F_{\text{act,dir}}$ vermindert wird. Daher wird F_{act} in diesem Wellenlängenbereich erhöht.

$F_{\text{act,diff}}$ wird in einer mit urbanem Aerosol belasteten Atmosphäre bei $\lambda < 420$ nm reduziert. Verursacht ist dies durch das höhere Absorptionsvermögen der urbanen Aerosolpartikel. Auf Grund der größeren Anzahl an Streuprozessen wird der mittlere Photonenweg verlängert. Bei Anwesenheit von absorbierenden Aerosolpartikeln führt diese Photonenwegverlängerung zu höherer Absorption. Bei $\lambda > 420$ nm wird $F_{\text{act,diff}}$ im Vergleich zum $F_{\text{act,diff}}$ aus *Ozon-308DU* erhöht. Die Verminderung von $F_{\text{act,dir}}$ ist jedoch im Vergleich zur Erhöhung von $F_{\text{act,diff}}$ größer. Deshalb wirkt sich die Erhöhung von $F_{\text{act,diff}}$ nicht auf eine Erhöhung von F_{act} aus, so dass netto eine Verminderung von F_{act} folgt.

5.4.2 Variation der Aerosolanzahlkonzentration

Zur Untersuchung der Auswirkung unterschiedlicher Aerosolanzahlkonzentrationen auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre wurde die Aerosolanzahlkonzentration in *JR* (vgl. Abb. 2.3) zum einen verdoppelt (*High-JR*) und zum anderen halbiert (*Low-JR*). Die resultierenden F_{act} aus *Low-JR* und *High-JR* werden mit F_{act} aus *JR* verglichen. Tab. 5.5 gibt einen Überblick über die verwendeten Eingabedaten des Modells.

Abb. 5.14 zeigt die optische Dicke der einzelnen Extingenten. Die gestrichelte Linie beschreibt die optische Dicke des Aerosols τ_{aer} der Simulation *JR*. Die strichpunktiierte Linie bezieht sich auf τ_{aer} aus *High-JR* und die strich-dreifach-punktiierte Linie auf τ_{aer} aus *Low-JR*. Die durchgezogene und die gepunktete Linien sind τ_{ray}

| Simulation | <i>Low-JR</i> | <i>High-JR</i> |
|---|---------------|----------------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - |
| Aerosoltyp und -größenverteilung | <i>JR</i> | <i>JR</i> |
| Faktor zur Veränderung von N_{aer} | 0.5 | 2 |
| Wolke | - | - |

Tabelle 5.5: Modelleingabe zur Untersuchung der Sensitivität auf die Aerosolanzahlkonzentration.

und τ_{O_3} .

In *JR* wird τ_{aer} von 0.76 bei $\lambda = 292$ nm auf $\tau_{aer} = 0.32$ bei $\lambda = 850$ nm reduziert. Die Verwendung der doppelten Aerosolanzahlkonzentration *High-JR* führt zu einem τ_{aer} von 1.50 bei $\lambda = 292$ nm und $\tau_{aer} = 0.63$ bei $\lambda = 850$ nm. Bei *Low-JR* nimmt τ_{aer} von 0.20 bei $\lambda = 292$ nm auf $\tau_{aer} = 0.08$ bei $\lambda = 850$ nm ab. Die τ_{aer} von *JR*, *Low-JR* und *High-JR* werden in diesem Wellenlängenbereich alle um den Faktor 0.4 vermindert. Die relative Abnahme der optischen Dicke des Aerosols mit zunehmender Wellenlänge bleibt also konstant. Dies ist auf die lineare Veränderung (Halbierung oder Verdopplung) der Aerosolanzahlkonzentration bei konstanter chemischer Zusammensetzung der Partikel und Größenverteilung zurückzuführen.

Abb. 5.15 zeigt die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses ΔF_{act} in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ und der Höhe z . Der Referenzwert X_{ref} aus Gl. (5.1) ist dabei F_{act} aus *JR*. Im linken Teil der Abb. 5.15 entspricht X der Größe F_{act} aus *Low-JR* und im rechten Teil F_{act} aus *High-JR*.

Durch eine Reduktion der Aerosolanzahlkonzentration in *Low-JR* im Vergleich zu *JR* wird F_{act} nahezu über alle Höhen und Wellenlängen vermindert. Nur bei $\lambda < 520$ nm und innerhalb der untersten 500 m ist F_{act} aus *Low-JR* größer als F_{act} aus *JR*. Die maximale Verminderung um 7% findet bei $\lambda = 425$ nm in einer Höhe von $z = 1.4$ km statt. Die maximale Erhöhung erfolgt bei $\lambda = 310$ nm am Boden und beträgt 12.6%. Durch die Verdopplung der Aerosolanzahlkonzentration in *High-JR* ergibt sich durch

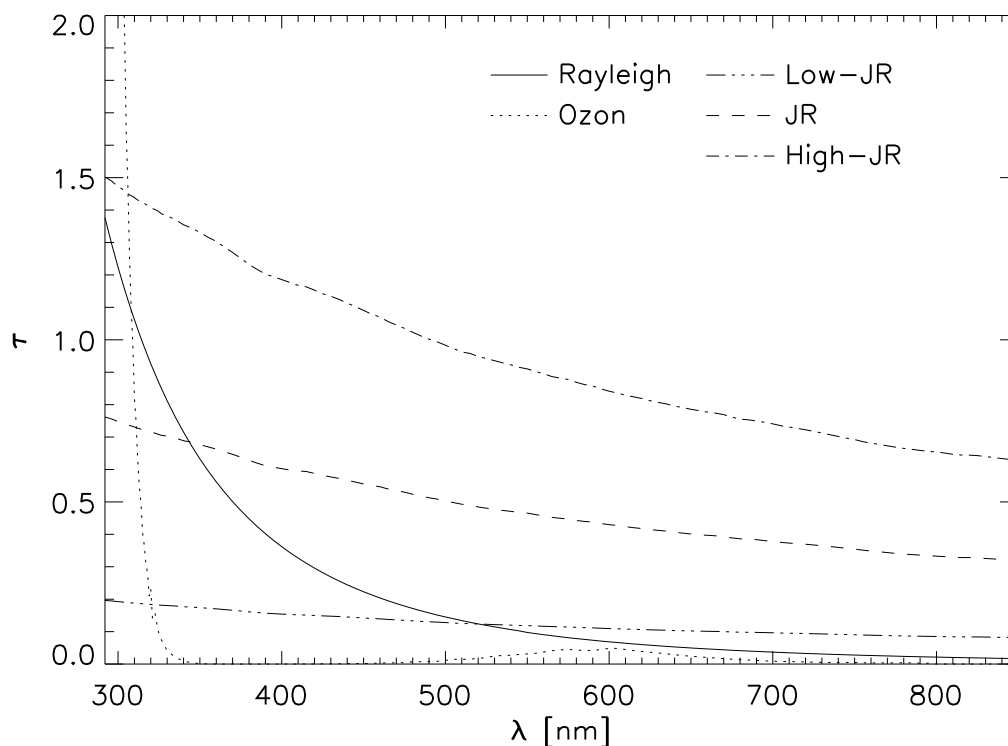


Abbildung 5.14: τ_{ray} , τ_{O_3} und τ_{aer} in Abhängigkeit von λ für die Simulationen *Low-JR*, *JR* und *High-JR*.

den Vergleich mit F_{act} aus *JR* eine Verminderung von F_{act} in Bodennähe bei allen dargestellten Wellenlängen. Die maximale Reduktion von F_{act} um 15.6% findet bei $\lambda = 292$ nm am Boden statt. Die maximale Erhöhung um 7% ist bei $\lambda = 625$ nm und $z = 1$ km.

In *Früh et al.* (2000b) wurde außerdem der Einfluss der Aerosolanzahlkonzentration auf das $J(\text{NO}_2)$ -Profil untersucht. Es wurde festgestellt, dass eine höhere Aerosolanzahlkonzentration zu einer Erhöhung des $J(\text{NO}_2)$ oberhalb der Aerosolschicht und einer entsprechenden Verminderung des $J(\text{NO}_2)$ in Bodennähe führt.

5.4.3 Variation der Aerosolgrößenverteilung

Auch die Größenverteilung der Aerosolpartikel $dN_{\text{aer}}/d \log r$ ist ein wichtiges Maß für die Beschreibung der optischen Eigenschaften des Aerosols. Da die Größenverteilung räumlich und zeitlich sehr variabel ist, können die in der Literatur verwendeten Parameter zur Beschreibung der Aerosolgrößenverteilungen lediglich als mittlere Werte

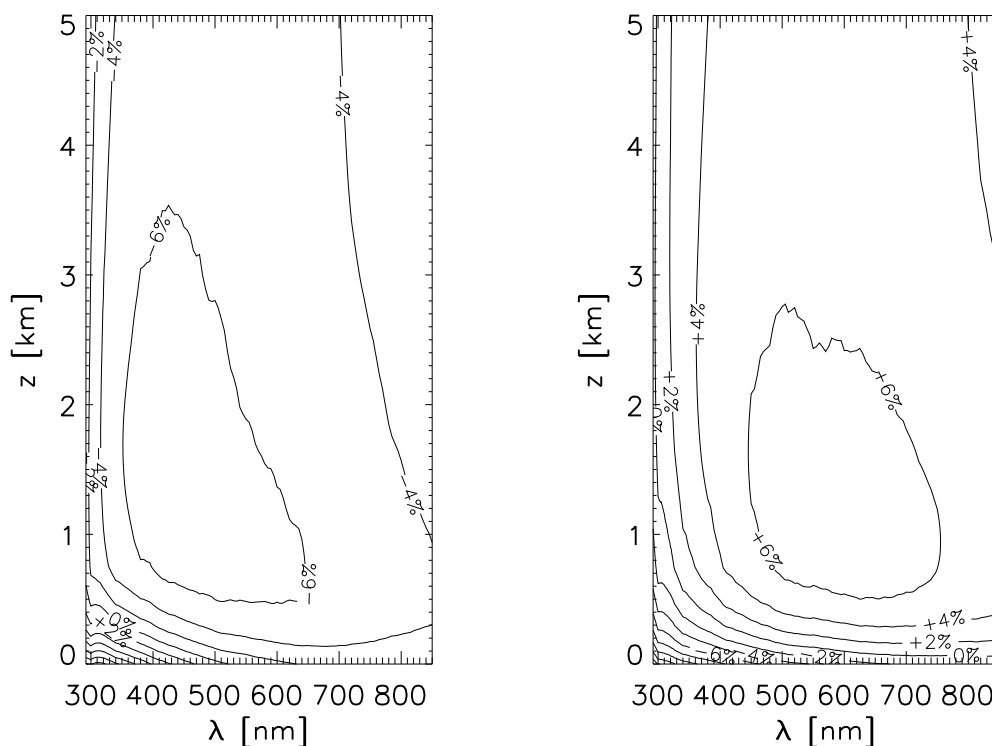


Abbildung 5.15: ΔF_{act} von F_{act} aus *Low-JR* (links) und *High-JR* (rechts) zu F_{act} aus *JR* in Abhängigkeit von λ und z .

verstanden werden. Zur Untersuchung des Einflusses der Aerosolgrößenverteilung auf den aktinischen Fluss wurden beispielhaft die Verteilungsparameter für die trimodale Aerosolverteilung von *Jaenicke* (1988) und die bimodale Aerosolverteilung von *Shettle und Fenn* (1979) herangezogen. Das Anwachsen der Aerosolpartikel auf Grund der Umgebungsfuchte wird für diese Untersuchung vernachlässigt. Einen Überblick über die verwendeten Eingabedaten des Modells bietet Tab. 5.6.

Abb. 5.16 zeigt die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses ΔF_{act} bei Verwendung unterschiedlicher Aerosolgrößenverteilungen. In der linken Abb. 5.16 wird ein Vergleich von F_{act} in einer mit urbanem Aerosol belasteten Atmosphäre durchgeführt. Dargestellt ist die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *dry-SFU* zu F_{act} aus *dry-JU*. Der rechte Teil der Abb. 5.16 bezieht sich auf rurales Aerosol und zeigt die Abweichung von F_{act} aus *dry-SFR* zu F_{act} aus *dry-JR*.

In beiden Abb. 5.16 wird deutlich, dass sich die größten Abweichungen ΔF_{act} innerhalb der untersten 2 km ausbilden, wo die Aerosolanzahlkonzentration am größten ist. Auch zu kürzeren Wellenlängen hin werden die Abweichungen größer.

| Simulation | <i>dry-JR</i> | <i>dry-JU</i> | <i>dry-SFR</i> | <i>dry-SFU</i> |
|---------------|---------------|---------------|----------------|----------------|
| T, p | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - | - | - |
| Aerosol | <i>JR</i> | <i>JU</i> | <i>SFR</i> | <i>SFU</i> |
| Wolke | - | - | - | - |

Tabelle 5.6: Modelleingabe zur Untersuchung der Sensitivität auf die Aerosolgrößenverteilung.

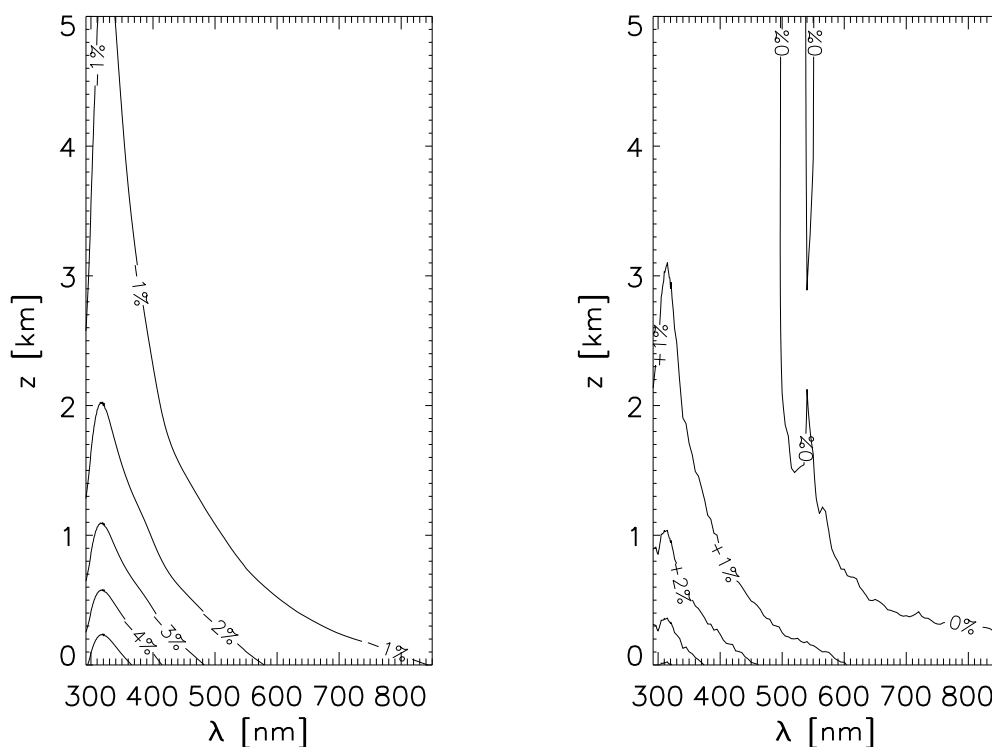


Abbildung 5.16: ΔF_{act} der Simulationen *dry-SFU* zu *dry-JU* (links) und *dry-SFR* zu *dry-JR* (rechts) in Abhängigkeit von λ und z .

Im Fall des urbanen Aerosols (Abb. 5.16, links) ist F_{act} aus *dry-SFU* am Boden bei $\lambda = 319 \text{ nm}$ um 5.9% geringer als F_{act} aus *dry-JU*. Zur Erläuterung der in Abb. 5.16 dargestellten Abweichungen dient das in Gl. (2.34) definierte und in Abb. 2.6 dargestellte Produkt aus Aerosolgrößenverteilung und Streuquerschnitt η . Für urbanes

Aerosol ist η_{\max} in *dry-SFU* um den Faktor 1.3 höher als η_{\max} in *dry-JU*. Dies führt zu einer höheren Extinktion und damit größerem τ_{aer} . Das wiederum führt zu einem geringeren F_{act} aus *dry-SFU* im Vergleich zu F_{act} aus *dry-JU*.

Im ruralen Fall dagegen ist F_{act} aus *dry-SFR* am Boden bei $\lambda = 319 \text{ nm}$ um 4.1% höher als F_{act} aus *dry-JR*. Hierbei ist η_{\max} in *dry-JR* um den Faktor 1.1 größer als in *dry-SFR*.

Der unterschiedliche Wert des η_{\max} erklärt sowohl die geringeren Veränderungen des aktinischen Flusses im ruralen Fall, als auch das umgekehrte Vorzeichen der Abweichungen.

5.4.4 Variation der chemischen Zusammensetzung

Als Beispiel für die Auswirkungen unterschiedlicher chemischer Zusammensetzungen der Aerosolpartikel auf das Strahlungsfeld wird der Unterschied der aktinischen Flüsse bei Verwendung von ruralem und urbanem Aerosol untersucht. Dabei wurden die Aerosoleigenschaften von *JU* und *JR* verwendet. Der Unterschied der beiden Aerosoleigenschaften liegt sowohl im Brechungsindex n als auch den Verteilungsparametern. Um die Auswirkung der Brechungsindizes von der Auswirkung der Verteilungsparameter zu separieren, wurde eine zusätzliche Simulation durchgeführt, bei der das Aerosol zwar die Verteilungsparameter des ruralen Aerosoltyps annimmt, der Brechungsindex jedoch dem des urbanen Aerosols entspricht. Diese Simulation wird mit *JR-U* bezeichnet. Einen Überblick über die verwendeten Eingabedaten des

| Simulation | <i>JR</i> | <i>JU</i> | <i>JR-U</i> |
|----------------------------|-----------|-----------|-------------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - | - |
| $dN_{\text{aer}}/d \log r$ | <i>JR</i> | <i>JU</i> | <i>JR</i> |
| n | rural | urban | urban |
| Wolke | - | - | - |

Tabelle 5.7: Modelleingabe zur Untersuchung der Sensitivität auf die chemische Komposition der Aerosolpartikel.

Modells bietet Tab. 5.7.

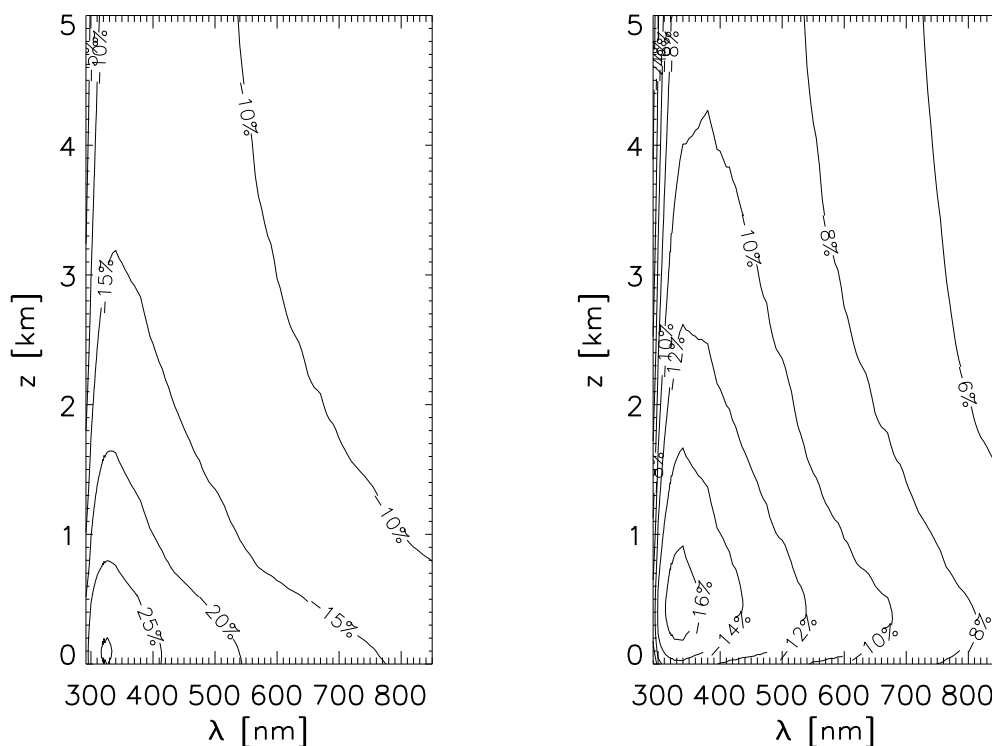


Abbildung 5.17: ΔF_{act} von F_{act} aus *JR-U* (links) und *JU* (rechts) zu F_{act} aus *JR* in Abhängigkeit von λ und z .

In Abb. 5.17 ist die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses ΔF_{act} in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ und der Höhe z dargestellt. Der Referenzwert X_{ref} aus Gl. (5.1) ist in beiden Teilen der Abbildung F_{act} aus *JR*.

Im linken Teil der Abb. 5.17 ist die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *JR-U* zu F_{act} aus *JR* abgebildet. Die Abbildung zeigt eine deutliche Verringerung des aktinischen Flusses bei Verwendung des urbanen Brechungsindex. Bei $\lambda = 327$ nm und $z = 100$ m beträgt diese Verringerung 30.3%. Dies ist auf den höheren Absorptionsanteil des urbanen Aerosols zurückzuführen (vgl. Abb. 2.1).

Die rechte Abb. 5.17 zeigt ΔF_{act} von F_{act} aus *JU* zu F_{act} aus *JR*. In dieser Sensitivitätsstudie haben beide Aerosoltypen sowohl ihre spezifische Verteilung als auch Brechungsindizes. Die Abnahme von F_{act} ist in diesem Fall geringer. Das maximale ΔF_{act} befindet sich bei $\lambda = 340$ nm in 450 m Höhe und beträgt -16.9%. Der höheren Absorption infolge des urbanen Brechungsindex in *JU* steht eine geringere Streuung im Vergleich zu *JR* gegenüber. In *JR* ist η_{max} aus Gl. (2.34) um den Faktor 1.6 größer als in *JU*. Das bedeutet, dass die Aerosolpartikel der ruralen Aerosolgrößen-

verteilung mehr streuen als die Aerosolpartikel der urbanen Aerosolgrößenverteilung. Aus diesem Grund sind die im linken Teil der Abb. 5.17 dargestellten Abweichungen von *JR-U* zu *JR* größer als die im rechten Teil der Abb. 5.17 dargestellten von *JU* zu *JR*.

5.4.5 Variation der relativen Feuchte

Im Folgenden soll nun der Einfluss unterschiedlicher relativer Feuchten auf den aktiven Fluss untersucht werden. Die unterschiedlichen *rh*-Profile führen zu unterschiedlichem Anwachsen der Aerosolpartikel. Entsprechend Gl. (2.14) führt dies zu unterschiedlichen Größenverteilungen der feuchten Aerosolpopulation. Zur Untersuchung des Einflusses unterschiedlicher relativer Feuchten wurden sowohl für rurales Aerosol (*dry-JR*) als auch für urbanes Aerosol (*dry-JU*) Simulationen durchgeführt, bei welchen das Aufquellen der Aerosolpartikel vernachlässigt wurde. Die Simulationsergebnisse auf Basis der trockenen Aerosolpartikel wurden mit Simulationen verglichen, bei welchen die Aerosolpartikel unterschiedlichen relativen Feuchten ausgesetzt waren.

Abb. 5.18 zeigt das Vertikalprofil der relativen Feuchte nach *McClatchey* (1971) als gepunktete Linie. Dieses *rh*-Profil führte zu den bereits vorgestellten Simulationen *JR* und *JU* mit einem Bodenwert der relativen Feuchte von $rh(z_0) = 76\%$. In weiteren Simulationen wurde der Bodenwert der relativen Feuchte $rh(z_0)$ um $\Delta rh = 10\%$ auf $rh(z_0) = 86\%$ erhöht. Diese Simulationen werden mit *JR-86%* bzw. *JU-86%* bezeichnet. Mit zunehmender Höhe wird Δrh reduziert. Dadurch nähert sich *rh* aus *JR-86%* und *JU-86%* der relativen Feuchte des Standardprofils an. In 3.5 km Höhe hat das Feuchteprofil der Simulationen *JR-86%* und *JU-86%* den Wert des *rh*-Profils von *JR* bzw. *JU* erreicht. In Abb. 5.18 ist dieses *rh*-Profil durch die gestrichelte Linie dargestellt. Zusätzlich wurden Simulationen durchgeführt, bei der $rh(z_0)$ um $\Delta rh = 20\%$ auf $rh(z_0) = 96\%$ erhöht wurde. Diese werden mit *JR-96%* und *JU-96%* bezeichnet. In 3.5 km wird auch hier wieder der Wert des Standardprofils angenommen. In Abb. 5.18 ist dieses *rh*-Profil durch die strich-punktierte Linie dargestellt. Zunächst werden die Auswirkungen des Feuchtwachstums von ruralem Aerosol auf das Strahlungsfeld untersucht. Einen Überblick über die verwendeten Eingabedaten des Modells bietet Tab. 5.8.

Abb. 5.19 stellt die Aerosolgrößenverteilungen dar. Die durchgezogene Linie beschreibt die Größenverteilung des trockenen Aerosols in *dry-JR* (vgl. Abb. 2.2). Die

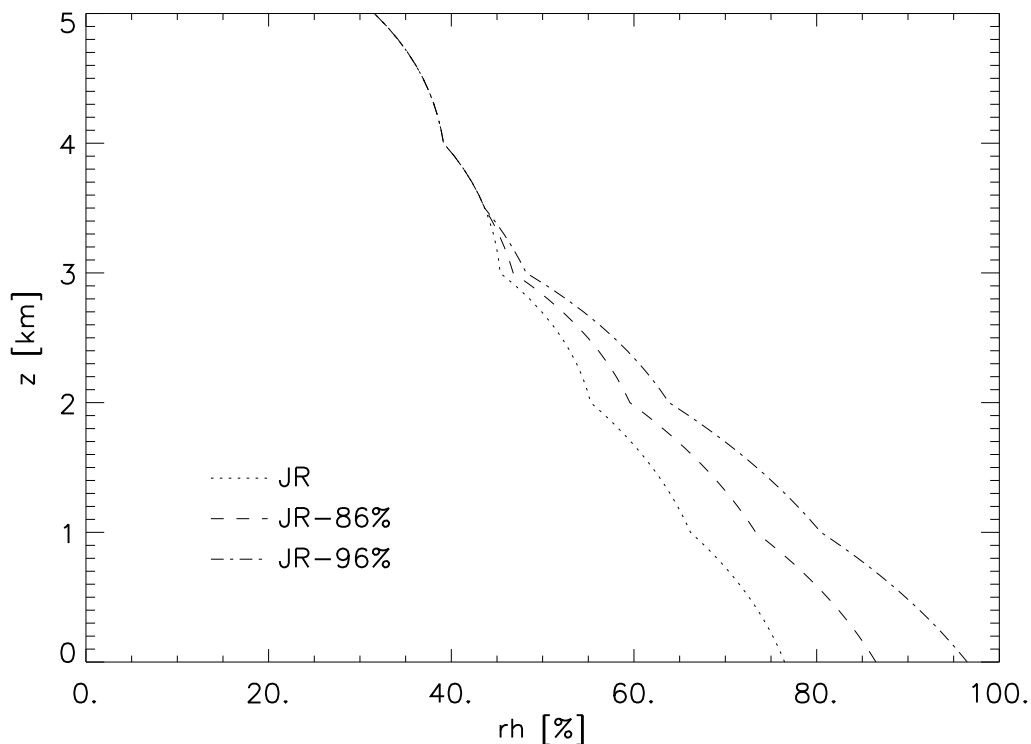


Abbildung 5.18: Vertikalprofil von rh für JR , $JR-86\%$ und $JR-96\%$.

gepunktete Linie beschreibt die Größenverteilung des aufgequollenen Aerosols in JR . Die gestrichelte Linie bezieht sich auf die feuchte Aerosolverteilung in $JR-86\%$ und die strich-punktierte Linie auf die in $JR-96\%$.

Zunächst ist das Anwachsen der Partikel mit zunehmender relativer Feuchte offensichtlich. Als Wachstumsfaktor κ (Gl. (2.18)) gemittelt über alle Radiusintervalle $\bar{\kappa}$ ergibt sich für JR $\bar{\kappa} = 1.35$, für $JR-86\%$ $\bar{\kappa} = 1.52$ und für $JR-96\%$ $\bar{\kappa} = 2.09$. Die höhere relative Feuchte führt zu einem stärkeren Anwachsen der Aerosolpartikel. Die Modenradien, also die Radien bei denen sich die größte Aerosolanzahlkonzentration befindet, werden zu größeren Radien verschoben und zusätzlich der Betrag des Maximums vermindert (vgl. Kap. 2.2.1).

Vergleich von F_{act}

Abb. 5.20 zeigt die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses ΔF_{act} in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ und der Höhe z . Der Referenzwert X_{ref} aus Gl. (5.1) ist dabei F_{act} aus *dry-JR*.

| Simulation | <i>dry-JR</i> / <i>dry-JU</i> | <i>JR-86%</i> / <i>JU-86%</i> | <i>JR-96%</i> / <i>JU-96%</i> |
|---------------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
| T, p | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - | - |
| Aerosol | <i>JR</i> / <i>JU</i> | <i>JR</i> / <i>JU</i> | <i>JR</i> / <i>JU</i> |
| $rh(z_0)$ | 0% | 86% | 96% |
| Wolke | - | - | - |

Tabelle 5.8: Modelleingabe zur Untersuchung der Sensitivität des Strahlungsfeldes auf aufgequollene Aerosolpartikel, welche unterschiedlichen rh -Profilen ausgesetzt wurden.

Im linken Teil der Abb. 5.20 ist X der aktinische Fluss aus *JR*. Das maximale ΔF_{act} tritt in 750 m Höhe bei $\lambda = 340$ nm mit einem Wert von +4.3% auf. Die maximale Verringerung von F_{act} findet am Boden bei $\lambda = 308$ nm statt und beträgt 3.7%.

Im rechten Teil der Abb. 5.20 ist X der aktinische Fluss der Simulation *JR-86%*. In diesem Fall beträgt das maximale ΔF_{act} +6.4% und befindet sich in 700 m Höhe bei $\lambda = 505$ nm. Die maximale Verringerung des aktinischen Flusses befindet sich wiederum am Boden bei $\lambda = 292$ nm und beträgt 7.2%.

Bei $z < 200$ m und $\lambda < 480$ nm wird F_{act} aus *JR* und *JR-86%* im Vergleich zu F_{act} aus *dry-JR* reduziert. Bei $z > 200$ m und $\lambda > 480$ nm ist F_{act} aus *JR* und *JR-86%* größer als F_{act} aus *dry-JR*. Diese Zunahme von F_{act} bei den Simulationen mit den feuchten Aerosolpartikeln ist verursacht durch die Erhöhung der Streuung an den aufgequollenen und dadurch größeren Aerosolpartikeln. Zusätzlich wird durch die Aufnahme von Wasser in die Aerosolpartikel der Imaginärteil des komplexen Brechungsindex reduziert. Somit ist die Absorption der Aerosolpartikel geringer. Die Abweichungen der beiden Simulationen *JR* und *JR-86%* zur Simulation *dry-JR* sind vergleichbar mit den Abweichungen der beiden Simulationen *JR* und *High-JR* zur Simulation *Ozon-308DU*, da das Aufquellen der Aerosolpartikel zu größeren Partikeln und damit zu einer höheren optischen Dicke auf Grund der höheren Streuung führt. Die höhen- und wellenlängenabhängigen Abweichungen sind deshalb auf dieselben Ursachen wie in Abschnitt 5.4.2 zurückzuführen.

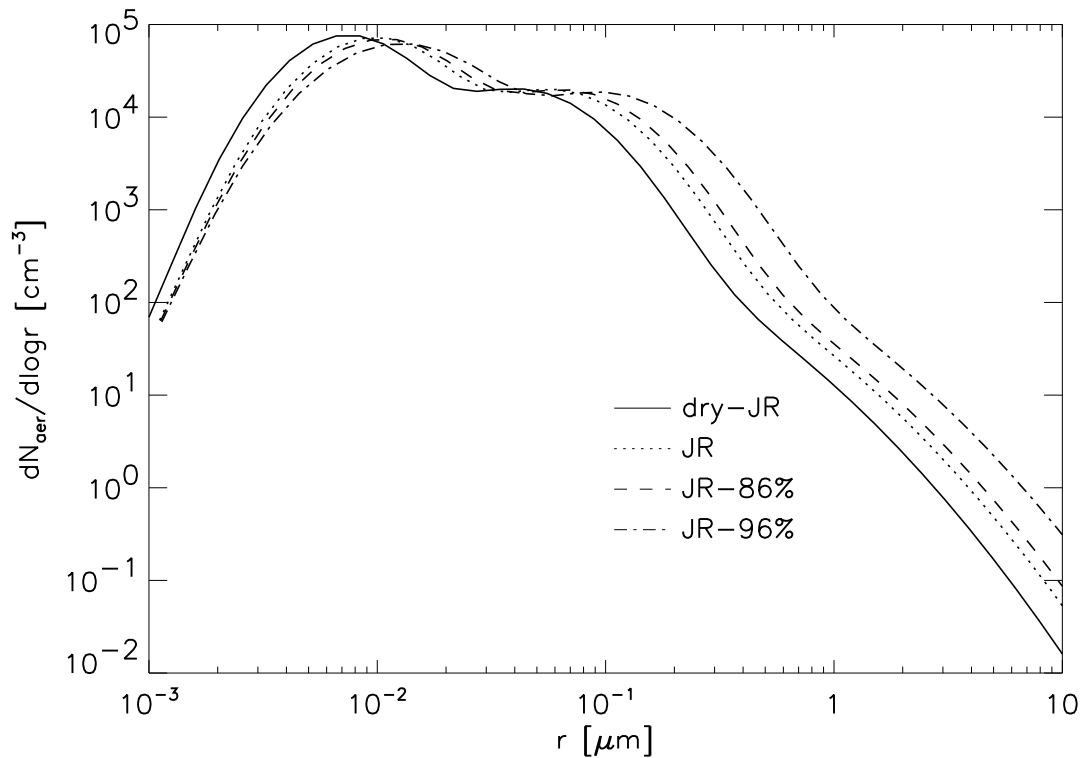


Abbildung 5.19: Aerosolgrößenverteilungen von *dry-JR*, *JR*, *JR-86%* und *JR-96%* am Boden.

Vergleich von $J(\text{NO}_2)$

Der linke, obere Teil der Abb. 5.21 zeigt das $J(\text{NO}_2)$ -Profil aus *dry-JR* (durchgezogene Linie), aus *JR* (gepunktete Linie), aus *JR-86%* (gestrichelte Linie) und aus *JR-96%* (strich-punktierte Linie).

Die rechte, obere Abb. 5.21 stellt die prozentualen Abweichungen von $J(\text{NO}_2)$ aus *JR*, *JR-86%* und *JR-96%* im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JR* dar. Die maximale Zunahme von $J(\text{NO}_2)$ aus *JR* im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JR* befindet sich in 750 m und beträgt 4.1%. Für $z < 750$ m nimmt $J(\text{NO}_2)$ stark ab und ist in Bodennähe gegenüber $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JR* um 2.4% reduziert. In 3 km Höhe, wo die Aerosolanzahlkonzentration bereits sehr viel geringer ist als in Bodennähe, ist $J(\text{NO}_2)$ aus *JR* um 2.3% größer als $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JR*. $J(\text{NO}_2)$ aus *JR-86%* ist in 3 km Höhe um 4.2% und $J(\text{NO}_2)$ aus *JR-96%* ist um 7.6% größer als $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JR*. Auch das maximale $\Delta J(\text{NO}_2)$ von *JR-86%* und *JR-96%* im Vergleich zu *dry-JR* ist größer als $\Delta J(\text{NO}_2)$ von *JR* zu *dry-JR*. Bei *JR-86%* liegt das maximale $\Delta J(\text{NO}_2)$ in 1.1 km

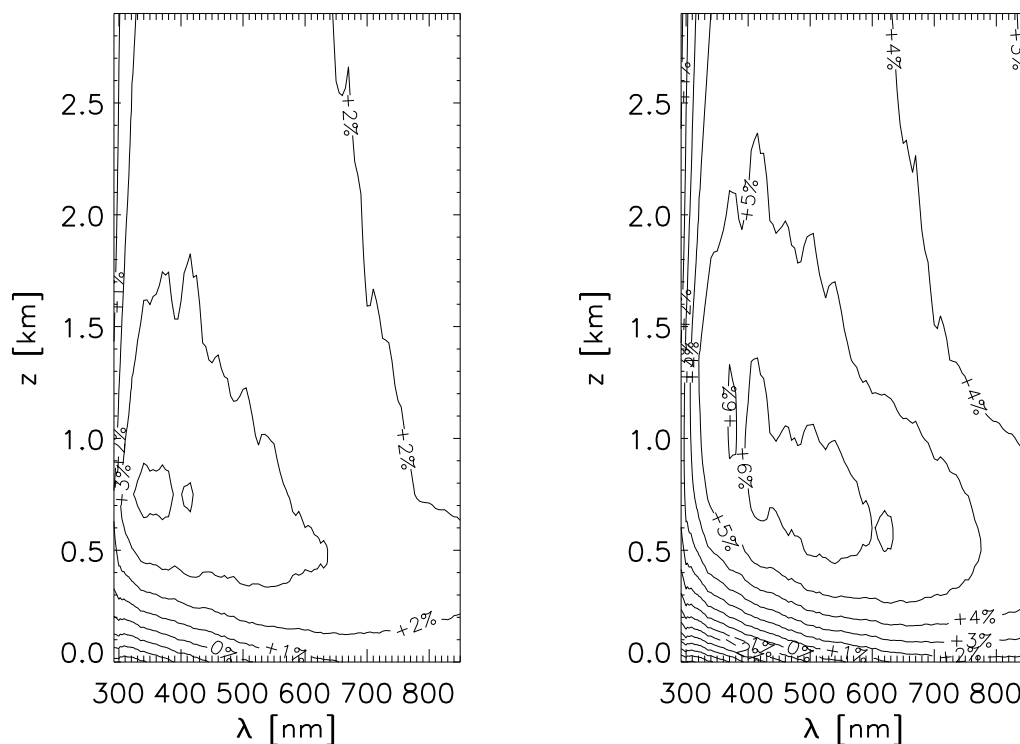


Abbildung 5.20: ΔF_{act} von F_{act} aus *JR* (links) und *JR-86%* (rechts) zu F_{act} aus *dry-JR* in Abhängigkeit von λ und z .

Höhe und beträgt +5.9% und bei *JR-96%* befindet sich das maximale $\Delta J(\text{NO}_2)$ in 900 m Höhe und beträgt +10.3%. Die Abnahme von $\Delta J(\text{NO}_2)$ unterhalb des Maximums wird mit zunehmender relativer Feuchte stärker. Bei *JR-86%* ist $J(\text{NO}_2)$ in Bodennähe um 4.9% und bei *JR-96%* um 11.9% im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus *JR* reduziert. Der obere Teil der Abb. 5.21 zeigt außerdem, dass sich alle Vertikalprofile von $J(\text{NO}_2)$ aus den unterschiedlichen Simulationen in 150 m Höhe schneiden.

Der linke, untere Teil der Abb. 5.21 zeigt das $J(\text{NO}_2)$ -Profil resultierend aus *dry-JU* (durchgezogene Linie), aus *JU* (gepunktete Linie), aus *JU-86%* (gestrichelte Linie) und aus *JU-96%* (strich-punktierte Linie).

Die rechte, untere Abb. 5.21 beschreibt die prozentualen Abweichungen $\Delta J(\text{NO}_2)$ von $J(\text{NO}_2)$ aus *JU*, *JU-86%* und *JU-96%* zu $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JU*. Die maximale Erhöhung von $J(\text{NO}_2)$ aus *JU* zu $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JU* befindet sich in 750 m und beträgt 0.4%. Für $z < 750$ m nimmt $\Delta J(\text{NO}_2)$ stark ab. In Bodennähe ist $J(\text{NO}_2)$ aus *JU* um 4.7% geringer als $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JU*. In 3 km Höhe ist $J(\text{NO}_2)$ aus *JU* um 0.1% größer als $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JU*.

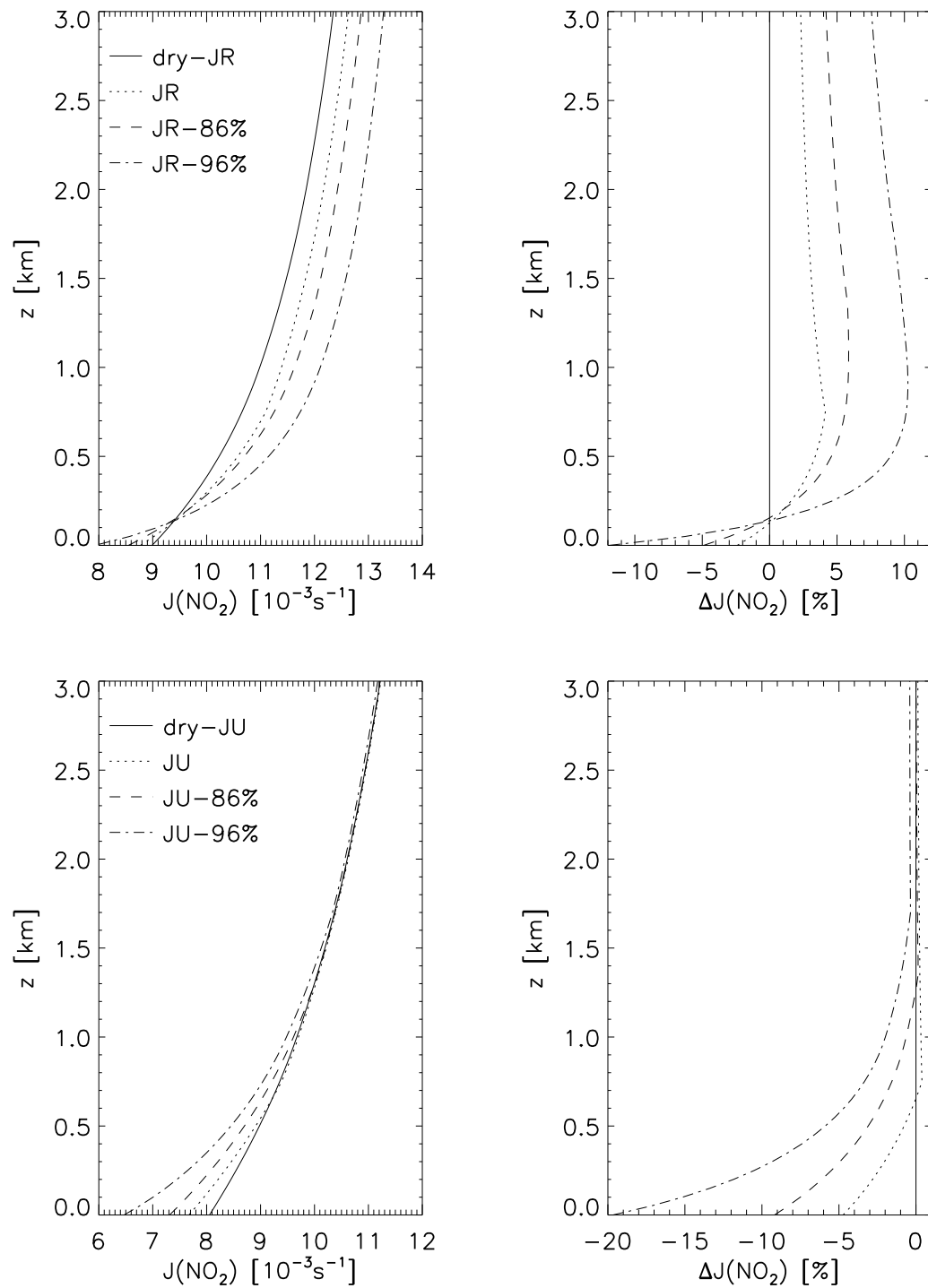


Abbildung 5.21: Oben: $J(\text{NO}_2)$ von *dry-JR*, *JR*, *JR-86%* und *JR-96%* (links) und $\Delta J(\text{NO}_2)$ von *JR*, *JR-86%* und *JR-96%* zu *dry-JR* (rechts). Unten: $J(\text{NO}_2)$ von *dry-JU*, *JU*, *JU-86%* und *JU-96%* (links) und $\Delta J(\text{NO}_2)$ von *JU*, *JU-86%* und *JU-96%* zu *dry-JU* (rechts).

$\Delta J(\text{NO}_2)$ von *JU-86%* zu *dry-JU* ist in 3 km Höhe nahezu null. Für $z = 3$ km ist $J(\text{NO}_2)$ aus *JU-96%* um 0.4% geringer als $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JU*. Die maximale Erhöhung von $J(\text{NO}_2)$ aus *JU-86%* im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus *JU* befindet sich in 1.35 km Höhe und beträgt 0.1%. $J(\text{NO}_2)$ aus *JU-96%* ist über das gesamte Vertikalprofil kleiner als $J(\text{NO}_2)$ aus *dry-JU*. In Bodennähe nimmt $J(\text{NO}_2)$ sehr stark ab. $\Delta J(\text{NO}_2)$ von *JU-86%* zu *dry-JU* beträgt dort -9.2% und $\Delta J(\text{NO}_2)$ von *JU-96%* zu *dry-JU* beträgt -19.7%.

Die aufgequollenen ruralen Aerosolpartikel erhöhen $J(\text{NO}_2)$ oberhalb und im oberen Teil der Grenzschicht. Im unteren Teil der Grenzschicht wird $J(\text{NO}_2)$ reduziert. Je höher die relative Feuchte, desto größer die Aerosolpartikel, desto größer die Erhöhung im oberen Teil und desto größer die Verminderung im unteren Teil der Grenzschicht.

Die aufgequollenen urbanen Aerosolpartikel vermindern $J(\text{NO}_2)$ nahezu im gesamten Vertikalprofil. Durch die erhöhte Streuung an den größeren Aerosolpartikeln ist die Wahrscheinlichkeit der Absorption höher. Dadurch wird $J(\text{NO}_2)$ vermindert.

5.4.6 Variation der Löslichkeit der Partikel

Zur Untersuchung des Einflusses der Löslichkeit der Aerosolpartikel auf den aktiven Fluss wurde die von *Shettle und Fenn* (1979) angegebene Löslichkeit ε zur Beschreibung des ruralen Aerosols von 70% auf 80% bzw. 90% erhöht. Der Brechungsindex n wurde dabei nicht verändert. Entsprechend der Gl. (2.14) führt dies zu einem effizienteren Anwachsen der Aerosolpartikel und damit zu größeren Partikeln. Als Basis für den Vergleich diente die Simulation *JR* mit $\varepsilon = 70\%$. Bei der Simulation *Lös-80%* wurde die Löslichkeit des Aerosols auf $\varepsilon = 80\%$ erhöht und bei der Simulation *Lös-90%* wurde $\varepsilon = 90\%$ verwendet. Das Feuchteprofil entsprach für alle Simulationen dem rh -Profil von *McClatchey* (1971) mit einem Bodenwert von $rh(z_0) = 76\%$. Einen Überblick über die verwendeten Eingabedaten des Modells befindet sich in Tab. 5.9.

Abb. 5.22 stellt die Aerosolgrößenverteilungen dar. Die durchgezogene Linie beschreibt die Größenverteilung des trockenen Aerosols in *dry-JR* (vgl. Abb. 2.2). Die gepunktete Linie beschreibt die Aerosolgrößenverteilung in *JR*. Die gestrichelte Linie bezieht sich auf die Aerosolgrößenverteilung in *JR-86%* und die strich-punktierte auf die in *JR-96%*. Die Erhöhung der Löslichkeit der Aerosolpartikel wirkt sich nur gering auf das Anwachsverhalten der Partikel aus. Dies wird auch durch den geringen

| Simulation | <i>JR</i> | <i>Lös-80%</i> | <i>Lös-90%</i> |
|---------------|-----------|----------------|----------------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - | - |
| Aerosol | <i>JR</i> | <i>JR</i> | <i>JR</i> |
| ε | 70% | 80% | 90% |
| Wolke | - | - | - |

Tabelle 5.9: Modelleingabe zur Untersuchung der Sensitivität auf die Löslichkeit der Aerosolpartikel.

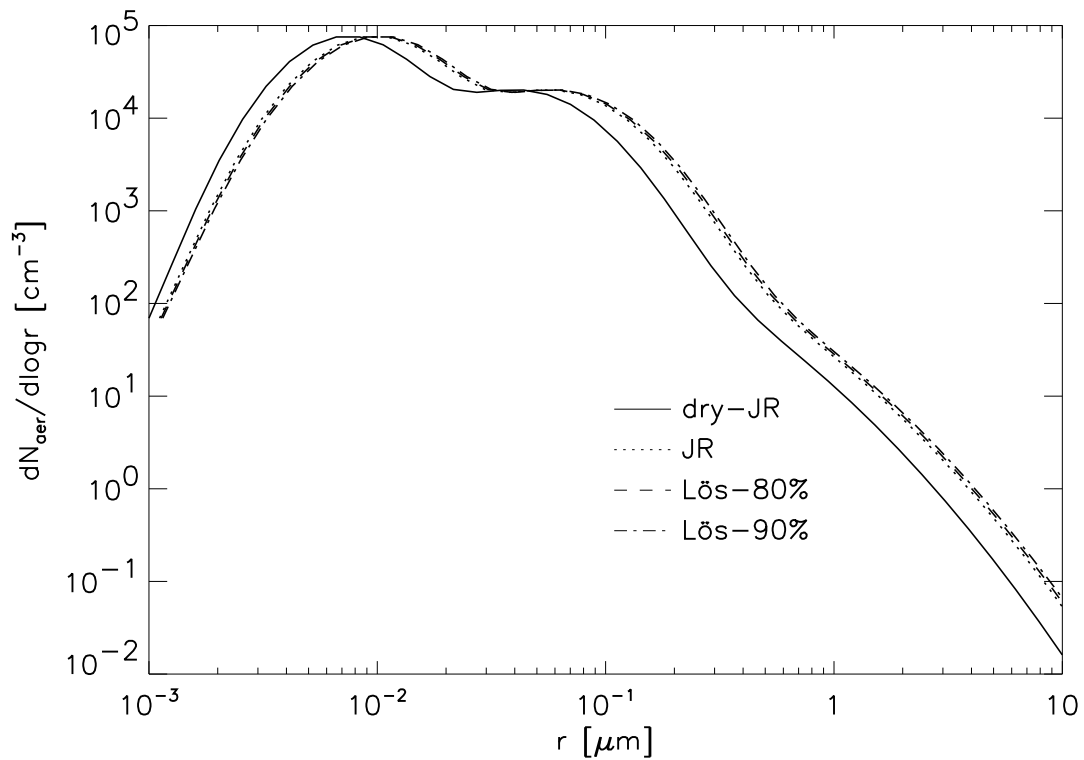


Abbildung 5.22: Aerosolgrößenverteilungen von *dry-JR*, *JR*, *Lös-80%* und *Lös-90%* am Boden.

Unterschied zwischen den mittleren Wachstumsfaktoren der Simulationen deutlich. Als mittlerer Wachstumsfaktor $\bar{\kappa}$ ergibt sich für *JR* $\bar{\kappa} = 1.35$, für *Lös-80%* $\bar{\kappa} = 1.40$ und für *Lös-90%* $\bar{\kappa} = 1.44$.

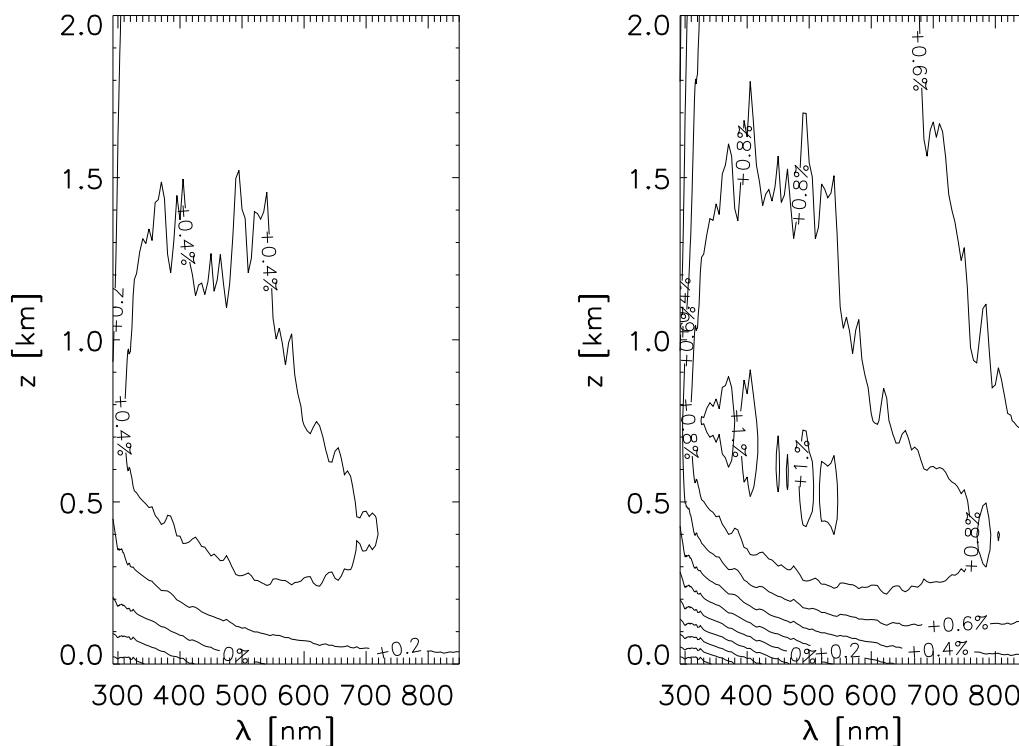


Abbildung 5.23: ΔF_{act} von F_{act} aus *Lös-80%* (links) und F_{act} aus *Lös-90%* (rechts) zu F_{act} aus *JR* in Abhängigkeit von λ und z .

Abb. 5.23 zeigt die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses ΔF_{act} in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ und der Höhe z . Der Referenzwert X_{ref} aus Gl. (5.1) ist dabei der aktinische Fluss aus Simulation *JR*. Im linken Teil der Abb. 5.23 ist X der aktinische Fluss aus *Lös-80%* und im rechten Teil der Abbildung F_{act} aus *Lös-90%*.

Die maximale Erhöhung des aktinischen Flusses der Simulation *Lös-80%* findet bei $\lambda = 370$ nm in 750 m Höhe statt und beträgt 0.5%. Die maximale Verminderung von F_{act} befindet sich bei $\lambda = 317$ nm am Boden mit einem Betrag von 0.5%. Für die Simulation *Lös-90%* sind die Abweichungen etwas größer. Die maximale Zunahme von F_{act} befindet sich in 750 m bei einer Wellenlänge von $\lambda = 370$ nm und beträgt 1.1%, wogegen die maximale Verminderung am Boden bei $\lambda = 317$ nm stattfindet und -1% beträgt.

Die Änderung der Löslichkeit der Partikel hat nur einen geringen Einfluss auf den aktinischen Fluss. Dennoch muss die Löslichkeit der Partikel berücksichtigt werden, da ansonsten kein Anwachsen der Partikel stattfinden würde, und somit lediglich der

aktinische Fluss der Simulation *dry-JR* resultieren würde, bei welchem das Aufquellen der Partikel vollständig vernachlässigt wurde.

5.4.7 Variation des Sonnenzenitwinkels in aerosolbelasteter Atmosphäre

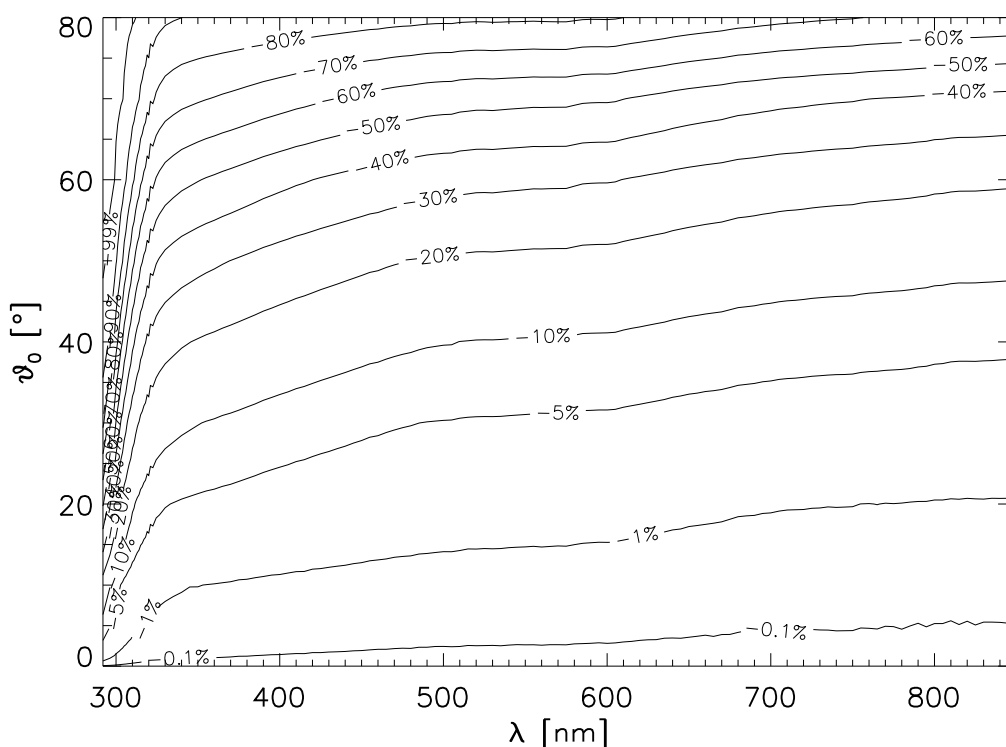


Abbildung 5.24: Prozentuale Abweichung von F_{act} aus JR am Boden mit variierendem ϑ_0 zu F_{act} aus JR mit $\vartheta_0 = 0^\circ$ in Abhängigkeit von λ und ϑ_0 .

Abb. 5.24 zeigt analog zur Abb. 5.6 die Auswirkung unterschiedlicher Sonnenzenitwinkel ϑ_0 in aerosolbelasteter Atmosphäre auf den aktinischen Fluss am Boden in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ . Dargestellt ist die prozentuale Abweichung von F_{act} am Boden bei den Sonnenzenitwinkeln ϑ_0 von 0° bis 80° in 10° -Schritten zu F_{act} bei $\vartheta_0 = 0^\circ$.

Zunächst fällt auf, dass bei Wellenlängen $\lambda < 310 \text{ nm}$ ΔF_{act} in der hier betrachteten aerosolbelasteten Atmosphäre dem Wert von ΔF_{act} der aerosolunbelasteten Atmosphäre (vgl. Abb. 5.6) entspricht. Bei Wellenlängen $\lambda > 310 \text{ nm}$ ist ΔF_{act} folglich unabhängig von der Aerosolbelastung.

Bei $\lambda > 310$ nm unterscheiden sich ΔF_{act} in Abb. 5.6 und Abb. 5.24 stärker. Der Betrag von ΔF_{act} ist in aerosolbelasteter Atmosphäre (Abb. 5.24) größer als in unbelasteter Atmosphäre (Abb. 5.6) durch die größere Anzahl an Streukörpern. Der längere Photonenweg durch die Atmosphäre bei zunehmendem Sonnenzenitwinkel verstärkt den Effekt des Aerosols.

Die Wellenlängenabhängigkeit ist in aerosolbelasteter Atmosphäre geringer, da auch die optische Dicke des Aerosols weniger mit der Wellenlänge variiert als die optische Dicke der Ozonabsorption.

5.5 Der Einfluss der Wolkentropfen

Im folgenden Abschnitt sollen die Auswirkungen von horizontal homogenen, unendlich ausgedehnten Wolken auf das Strahlungsfeld untersucht werden. Zunächst werden dazu Simulationen durchgeführt bei denen die Wolkentropfen in unterschiedlicher Größenverteilung vorliegen. Neben den Veränderungen des Strahlungsfeldes auf Grund von Änderungen des Sonnenzenitwinkels wird auch der Aerosoleinfluss in bewölkter Atmosphäre untersucht. Weitere Sensitivitätsstudien untersuchen den Einfluss von übereinanderliegenden Wolkenschichten und vertikal veränderlichem Flüssigwassergehalt der Wolke.

5.5.1 Variation der Tropfengrößenverteilung

Zur Untersuchung der Auswirkungen unterschiedlicher Tropfengrößenverteilungen auf den aktinischen Fluss wurden vier Wolkentypen aus Tab. 2.3 ausgewählt und mit dem aktinischen Fluss der unbewölkten, aerosolfreien Atmosphäre (*Ozon-308DU* mit $\vartheta_0 = 30^\circ$) verglichen. Diese vier Wolkentypen sind: Stratus-I (*St-1*), Stratus-II (*St-2*), Stratocumulus-I (*Sc-1*) und Nimbostratus (*Nb*) mit den entsprechenden Verteilungsparametern in Tab. 2.3. Die Wolke befand sich in einer Höhe zwischen 600 m und 1000 m. Der Flüssigwassergehalt innerhalb der Wolke war konstant. Einen Überblick über die verwendeten Eingabedaten des Modells bietet Tab. 5.10.

In Abb. 5.25 ist die optische Dicke der verschiedenen Wolkentypen τ_{wol} (gestrichelte Linien) gegen die Wellenlänge aufgetragen. Dabei beziehen sich die Pluszeichen auf τ_{wol} von *St-1*, die Sterne auf *St-2*, die Rauten auf *Sc-1* und die Dreiecke auf *Nb*. Zum Vergleich sind außerdem τ_{ray} , τ_{O_3} und τ_{aer} von *JR* dargestellt.

Die Variation von τ_{wol} mit der Wellenlänge ist sehr gering. Für *St-1* ist $\tau_{\text{wol}} = 45.8$

| Simulation | <i>St-1</i> | <i>St-2</i> | <i>Sc-1</i> | <i>Nb</i> |
|----------------------------|-------------|-------------|-------------|-----------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - | - | - |
| Aerosol | - | - | - | - |
| $dN_{\text{wol}}/d \log r$ | <i>St-1</i> | <i>St-2</i> | <i>Sc-1</i> | <i>Nb</i> |
| Wolkenoberrand | 1000 m | 1000 m | 1000 m | 1000 m |
| Wolkenunterrand | 600 m | 600 m | 600 m | 600 m |

Tabelle 5.10: Modelleingabe zur Untersuchung der Sensitivität auf unterschiedliche Wolkentropfenverteilungen.

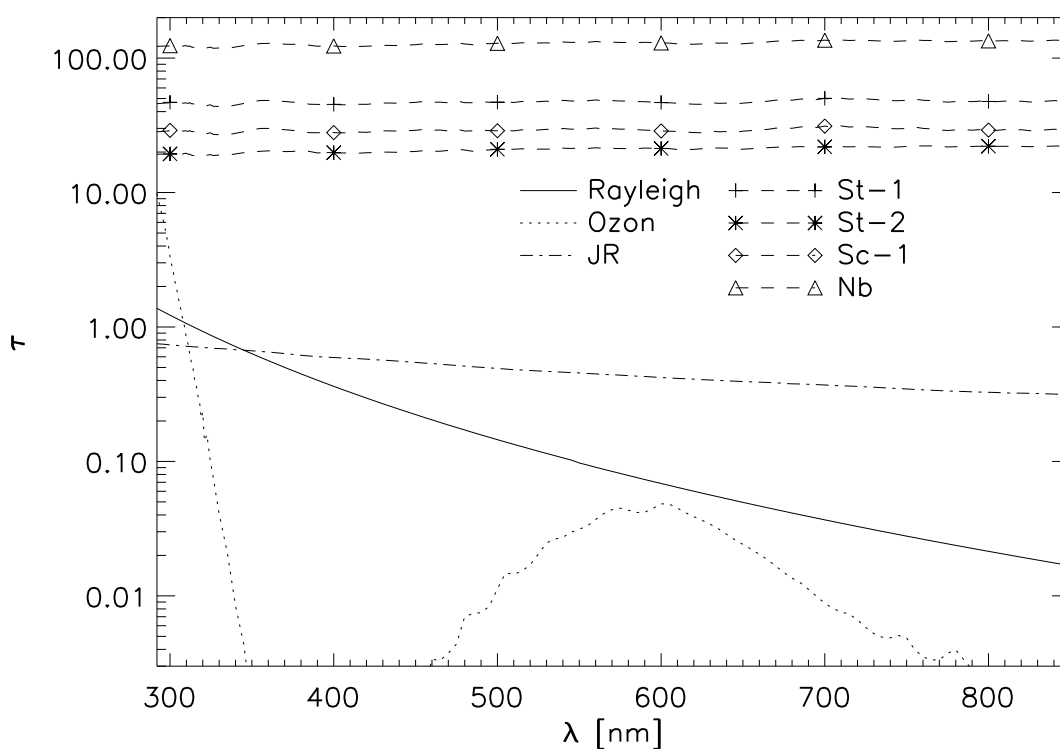


Abbildung 5.25: τ_{ray} , τ_{O_3} , τ_{aer} von *JR* und τ_{wol} von *St-1*, *St-2*, *Sc-1* und *Nb*.

bei $\lambda = 292$ nm und $\tau_{\text{wol}} = 48.3$ bei $\lambda = 850$ nm. Das bedeutet eine leichte Zunahme der optischen Dicke der Wolke mit zunehmender Wellenlänge im Gegensatz zu τ_{aer} , welches mit zunehmender Wellenlänge abnimmt. Auch für *St-2*, *Sc-1* und

Nb findet eine leichte Zunahme von τ_{wol} mit zunehmender Wellenlänge statt. Wegen der geringen Veränderung der optischen Dicke mit der Wellenlänge ist auch die spektrale Veränderung des aktinischen Flusses gering. Es ist deshalb ausreichend, Vertikalprofile von F_{act} eines Wellenlängenintervalls hinsichtlich des Wolkeneffekts zu untersuchen.

Wegen des höheren Flüssigwassergehalts der *Nb*-Wolke ist auch τ_{wol} von *Nb* größer als die optische Dicke der anderen Wolken. So ist bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ $\tau_{\text{wol}} = 21.4$ für *St-2*, $\tau_{\text{wol}} = 29.6$ für *Sc-1*, $\tau_{\text{wol}} = 48.0$ für *St-1* und $\tau_{\text{wol}} = 131.4$ für *Nb*. Im Vergleich dazu ist bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ $\tau_{\text{aer}} = 0.5$ für *JR*. Der Betrag von τ_{wol} ist also um Größenordnungen höher als der Betrag von τ_{aer} .

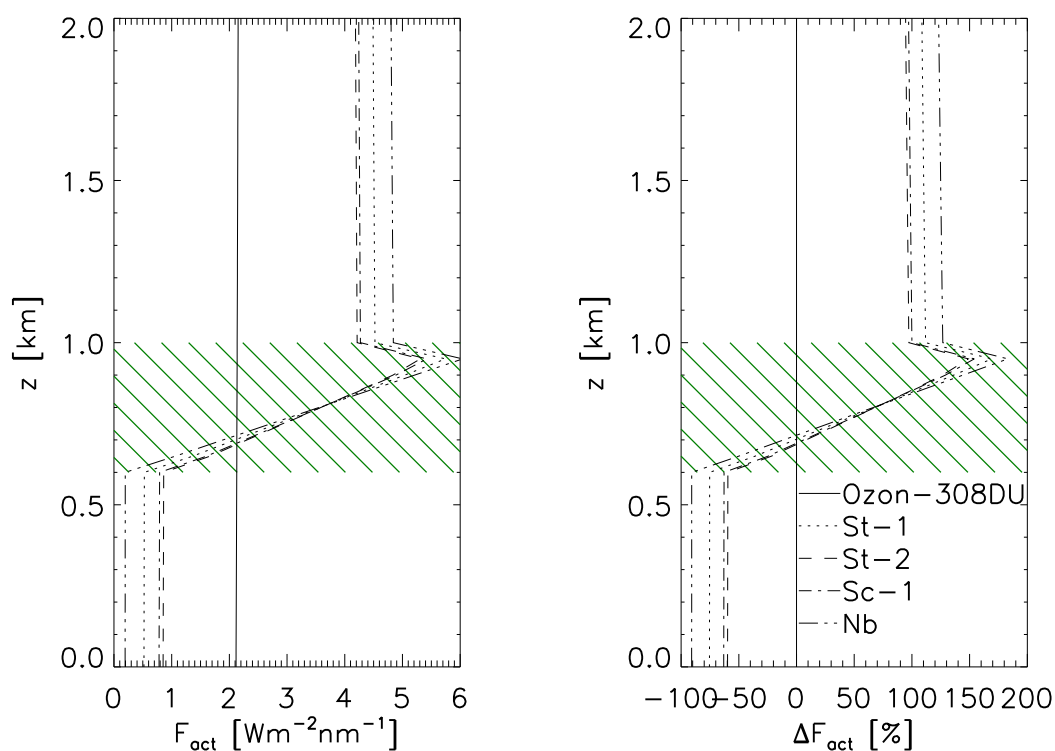


Abbildung 5.26: Vertikalprofil von F_{act} bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ (links) und prozentuale Abweichung ΔF_{act} (rechts) von *St-1*, *St-2*, *Sc-1* und *Nb* zu *Ozon-308DU* in Abhängigkeit von z .

Abb. 5.26 zeigt den aktinischen Fluss bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ für die unterschiedlichen Tropfengrößenverteilungen. Die gepunktete Linie beschreibt dabei das Vertikalprofil von F_{act} aus *St-1*, die gestrichelte von *St-2*, die strich-punktierte von *Sc-1* und die strich-dreifach-punktierte von *Nb*. Zum Vergleich wurde außerdem das Vertikalprofil von F_{act} aus *Ozon-308DU* dargestellt (durchgezogene Linie). Die schraffierte Fläche

beschreibt die Ausdehnung der Wolke.

Im linken Teil der Abb. 5.26 sind die Absolutwerte des aktinischen Flusses dargestellt. Bei allen Tropfengrößenverteilungen wird der Einfluss der Wolke deutlich sichtbar durch eine markante Erhöhung von F_{act} im oberen Teil der Wolke und einer starken Reduktion innerhalb der Wolke. Der Betrag von F_{act} für die verschiedenen Wolkentypen verhält sich entsprechend der optischen Dicke der Wolke. *St-2* enthält die optisch dünnste Wolke. F_{act} von *St-2* ist deshalb oberhalb der Wolke am geringsten und unterhalb der Wolke am größten verglichen mit den anderen Simulationen, welche Wolken enthalten. *Nb* simuliert die optisch dickste Wolke. Der aktinische Fluss von *Nb* ist oberhalb der Wolke am größten und unterhalb der Wolke am geringsten.

Die rechte Seite der Abb. 5.26 zeigt die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *St-1*, *St-2*, *Sc-1* und *Nb* zu F_{act} aus *Ozon-308DU*. Darin ist zu erkennen, dass sich F_{act} oberhalb Wolke etwa verdoppelt. Die Erhöhung von F_{act} aus *St-2* mit der geringsten optischen Dicke beträgt 94% in 2 km Höhe. Die Erhöhung des aktinischen Flusses in der Simulation *Nb* mit der größten optischen Dicke beträgt 123%.

Die maximale Erhöhung gegenüber dem wolkenfreien Fall liegt im Bereich der obersten Wolkenschicht und erreicht Werte von 148.8% bis 183.2%. Dieses Maximum, welches sich bei allen Wolkentypen ausbildet, ist durch die Streuung an den Wolkentropfen verursacht. Dadurch nimmt die diffuse Strahlung im oberen Teil der Wolke zu. Da die direkte Strahlung in diesem Teil der Wolke nur sehr wenig reduziert ist, findet eine starke Erhöhung von F_{act} in diesem Teil der Wolke statt. Mit zunehmender Eindringtiefe in die Wolke wird die Extinktion höher. Die direkte Strahlung wird dadurch stärker reduziert. Somit wird der aktinische Fluss unterhalb der Wolke um 59.8% bis 90.9% im Vergleich zur wolkenfreien Atmosphäre (*Ozon-308DU*) vermindert.

Wie bei *Van Weele und Duynkerke* (1993) bereits beschrieben, wirken sich unterschiedliche optische Dicken auf die Erhöhung und Verminderung des aktinischen Flusses oberhalb bzw. unterhalb der Wolke aus. Die Form des Vertikalprofils des aktinischen Flusses wird jedoch durch unterschiedliche optische Dicken der Wolken nicht wesentlich verändert.

| Simulation | <i>St-1</i> | <i>St-1-0°</i> | <i>St-1-60°</i> |
|----------------------------|-------------|----------------|-----------------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 0° | 60° |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - | - |
| Aerosol | - | - | - |
| $dN_{\text{wol}}/d \log r$ | <i>St-1</i> | <i>St-1</i> | <i>St-1</i> |
| Wolkenoberrand | 1000 m | 1000 m | 1000 m |
| Wolkenunterrand | 600 m | 600 m | 600 m |

Tabelle 5.11: Modelleingabe zur Untersuchung der Sensitivität auf Wolken bei unterschiedlichen ϑ_0 .

5.5.2 Variation des Sonnenzenitwinkels in bewölkter Atmosphäre

Tab. 5.11 beschreibt die Modelleingabe der zum Vergleich herangezogenen Simulationen.

Abb. 5.27 zeigt das Vertikalprofil des simulierten aktinischen Flusses bei Variation des Sonnenzenitwinkels ϑ_0 von 0° (*St-1-0°*, gepunktete Linie), über 30° (*St-1*, gestrichelte Linie) zu 60° (*St-1-60°*, strich-punktierter Linie). Bei einem Sonnenzenitwinkel von 0° ist der Absolutwert des aktinischen Flusses (vgl. Abb. 5.27, links) am größten, da der Weg durch die Atmosphäre am kürzesten ist und dadurch die geringste Extinktion stattfindet. Die effektive optische Dicke wird bei zunehmendem Sonnenzenitwinkel größer (vgl. Gl. (5.2)). Aus diesem Grund ist sowohl F_{act} als auch die maximale Erhöhung von F_{act} im Vergleich zu wolkenfreien Verhältnissen bei senkrechter Einstrahlung (*St-1-0°*) am größten. Der Anteil der direkten Strahlung oberhalb der Wolke ist bei $\vartheta_0 = 0^\circ$ am größten. Bei $\vartheta_0 = 60^\circ$ ist das ausgeprägte Maximum am Wolkenoberrand bereits vollständig verschwunden.

Die rechte Seite der Abb. 5.27 zeigt die prozentuale Abweichung von ΔF_{act} aus *St-1-0°*, *St-1* und *St-1-60°* zu F_{act} aus *Ozon-308DU*. Die maximale Erhöhung ΔF_{act} von F_{act} aus *St-1-0°* zu F_{act} aus *Ozon-308DU* bildet sich in einer Höhe von 950 m mit 233.8% aus, d.h. F_{act} wird im oberen Teil der Wolke im Vergleich zum wolkenfreien Fall mehr als verdoppelt. In 2 km Höhe beträgt diese Erhöhung noch 122.9%. Unterhalb der Wolke wird F_{act} aus *St-1-0°* um 69.1% im Vergleich zu *Ozon-308DU*

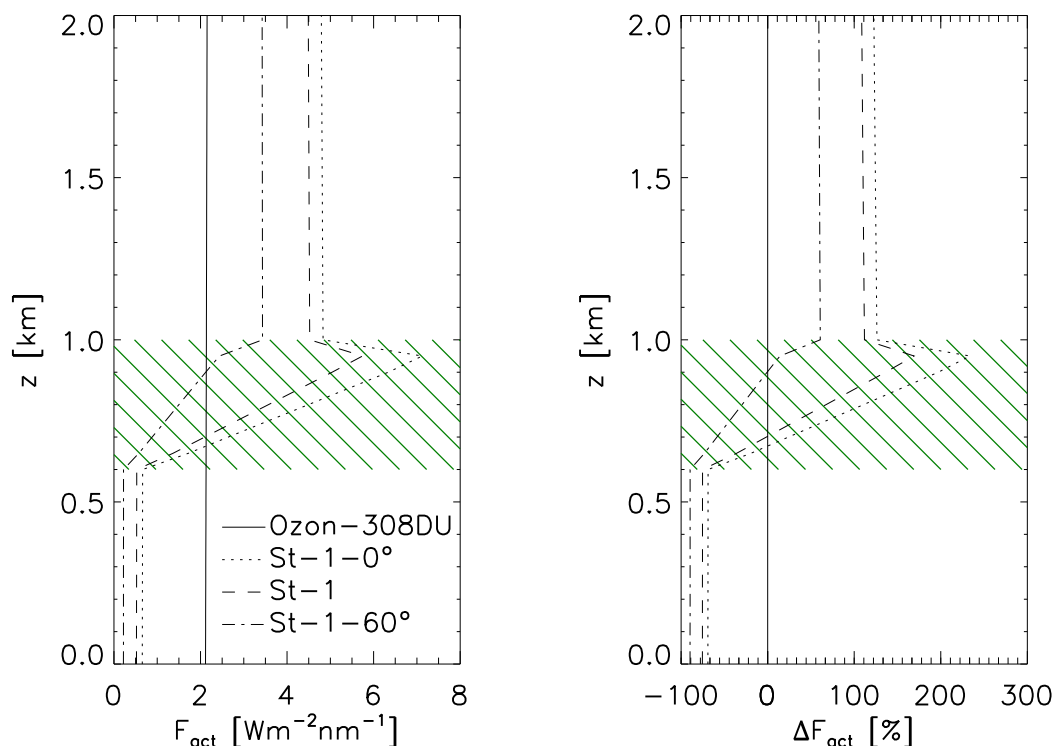


Abbildung 5.27: Vertikalprofil von F_{act} bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ (links) und prozentuale Abweichung ΔF_{act} (rechts) von $St-1-0^\circ$, $St-1$ und $St-1-60^\circ$ zu $Ozon-308DU$ in Abhängigkeit von z .

reduziert.

Bei $St-1-30^\circ$ sind die Beträge der Abweichungen etwas geringer. In 2 km Höhe beträgt die Zunahme des aktinischen Flusses 108.8%. In 950 m Höhe ist wiederum das Maximum der Erhöhung mit 169.2%. Unterhalb der Wolke findet eine Reduktion um 75.4% im Vergleich zu F_{act} aus $Ozon-308DU$ statt.

Die Simulation mit $\vartheta_0 = 60^\circ$ ($St-1-60^\circ$) verändert die Form des Vertikalprofils von F_{act} deutlich. Die Erhöhung von F_{act} in 2 km Höhe beträgt 59.2% und ist damit nur wenig geringer als die maximale Erhöhung in 950 m Höhe von 60.8%. Das ausgeprägte Maximum von F_{act} im oberen Teil der Wolke ist damit nicht mehr vorhanden. Die Abnahme von F_{act} unterhalb der Wolke beträgt im Vergleich zu $Ozon-308DU$ 89.7%.

Ein höherer Sonnenstand verursacht damit also eine stärkere Erhöhung von F_{act} oberhalb der Wolke und eine geringere Verminderung von F_{act} unterhalb der Wolke.

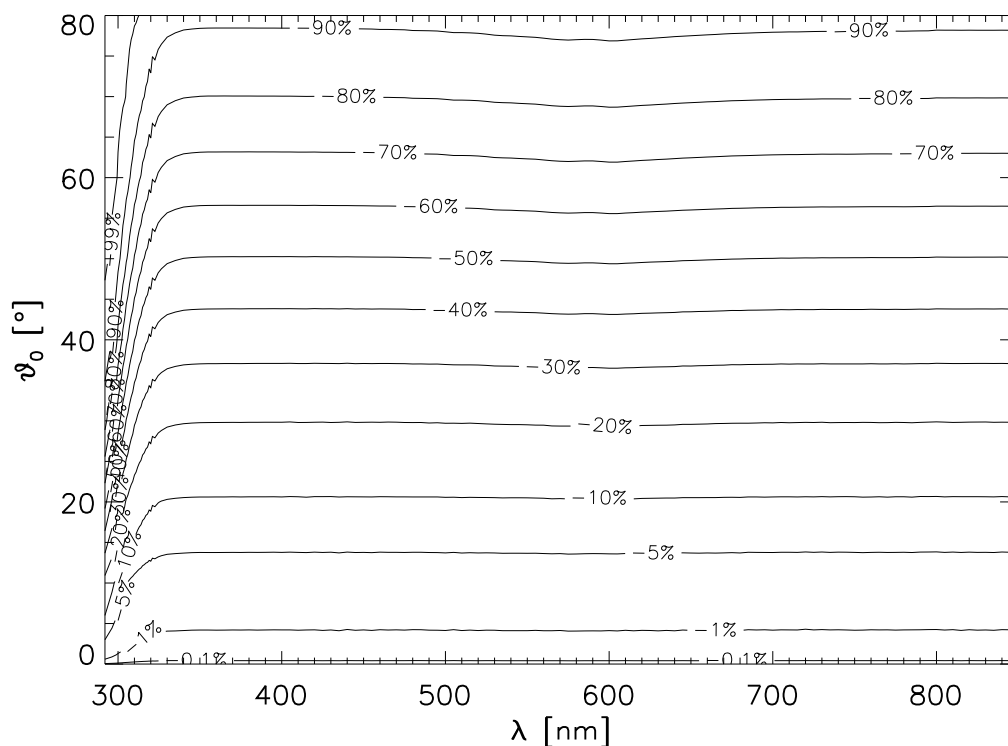


Abbildung 5.28: Prozentuale Abweichung von F_{act} aus *St-1* am Boden unter Variation von ϑ_0 von 0° bis 80° zu F_{act} aus *St-1* mit $\vartheta_0 = 0^\circ$ in Abhängigkeit von λ und ϑ_0 .

Abb. 5.28 zeigt analog zur Abb. 5.6 die Auswirkung unterschiedlicher Sonnenzenitwinkel ϑ_0 auf den aktinischen Fluss am Boden unter dem Einfluss der Wolke *St-1* in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ . Dargestellt ist die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *St-1* bei den Sonnenzenitwinkeln von $\vartheta_0 = 0^\circ$ bis $\vartheta_0 = 80^\circ$ in 10° -Schritten zu F_{act} bei $\vartheta_0 = 0^\circ$ aus *St-1*.

In dieser Abbildung wird deutlich, dass bei $\lambda > 330$ nm die Abnahme von F_{act} am Boden nahezu von der Wellenlänge unabhängig ist und mit zunehmendem Sonnenzenitwinkel größer wird. Bei einem Sonnenzenitwinkel von 80° kommt weniger als 90% von F_{act} am Boden an im Vergleich zum F_{act} bei $\vartheta_0 = 0^\circ$. Bei $\lambda < 330$ nm ist die Abnahme von F_{act} mit zunehmendem Sonnenzenitwinkel ϑ_0 wesentlich größer. Bei $\lambda = 292$ nm und einem Sonnenzenitwinkel von 50° wurde F_{act} am Boden bereits um mehr als 99% im Vergleich zu F_{act} bei $\vartheta_0 = 0^\circ$ reduziert.

Diese Untersuchung ist in Analogie zu den Abb. 5.6 und Abb. 5.24 zu sehen, welche die gleiche Untersuchung für eine reine Atmosphäre ohne Aerosol oder Wolkeneinfluss bzw. eine aerosolbelastete Atmosphäre beinhalten. Im Vergleich dazu ist anzu-

merken, dass die Abnahme des aktinischen Flusses unter Wolkeneinfluss wesentlich höher ist und bei $\lambda > 330$ nm nahezu unabhängig von der Wellenlänge vor sich geht. Bei Wellenlängen $\lambda < 310$ nm ist die Abnahme des aktinischen Flusses unter Wolkeneinfluss mit zunehmendem ϑ_0 nahezu identisch mit der Abnahme des aktinischen Flusses unter Aerosoleinfluss (vgl. Abb. 5.24) und ohne Aerosoleinfluss (vgl. Abb. 5.6). Aus diesem Grund ist die Abnahme in diesem Wellenlängenbereich nicht durch die Streuung an Partikeln, sondern auf die Absorption durch Ozon zurückzuführen.

5.5.3 Aerosoleinfluss in bewölkter Atmosphäre

Ein weiterer interessanter Punkt ist die Frage nach dem Einfluss des Aerosols in bewölkter Atmosphäre. Den aerosolfreien, bewölkten Bedingungen in *St-1* wurden zwei Simulationen gegenübergestellt, die zusätzlich zur Bewölkung auch dem Aerosoleinfluss ausgesetzt waren. Dazu wurde die Aerosolanzahlkonzentration von *McClatchey et al.* (1971) für eine verschmutzte Atmosphäre mit einer Sichtweite von 5 km verwendet. Bei der ersten Simulation *St-1-JR* war das Aerosol mit der ruralen Verteilungsfunktion nach *Jaenicke* (1988) verteilt. Der Brechungsindex der Aerosolpartikel entsprach dem des ruralen Aerosoltyps nach *Shettle und Fenn* (1979). Für die zweite Simulation *St-1-JU* wurden die Verteilungsparameter nach *Jaenicke* (1988) und der Brechungsindex nach *Shettle und Fenn* (1979) für den urbanen Aerosoltyp verwendet. Das Aufquellen des Aerosols infolge der Feuchtigkeit der umgebenden Luftmasse wurde mittels der Köhlergleichung Gl. (2.14) berücksichtigt. Tab. 5.12 gibt einen Überblick über die verwendeten Eingabedaten des Modells.

Abb. 5.29 zeigt die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *St-1-JR* zu F_{act} aus *St-1*. Der bewölkte Bereich ist schraffiert.

Oberhalb der Wolke verläuft die 0%-Isolinie bei $\lambda = 490$ nm in 2 km Höhe und bei $\lambda = 415$ nm in 1 km Höhe. Bei $\lambda > 415$ nm und $z > 1$ km wird F_{act} aus *St-1-JR* im Vergleich zu F_{act} aus *St-1* leicht erhöht. Die maximale Zunahme von F_{act} oberhalb der Wolke befindet sich bei $\lambda = 670$ nm in einer Höhe von 1.05 km, d.h. direkt oberhalb der Wolke, und beträgt 4.3%. Die maximale Verminderung oberhalb der Wolke liegt bei $\lambda = 315$ nm in 1.6 km und beträgt 6.2%.

Die maximale Verminderung innerhalb der Wolke erfolgt in 700 m Höhe bei $\lambda = 292$ nm und beträgt 10.1%. Im mittleren und oberen Teil der Wolke wird F_{act} durch die Auswirkungen der Aerosolpartikel im Vergleich zu F_{act} aus *St-1* redu-

| Simulation | <i>St-1</i> | <i>St-1-JR</i> | <i>St-1-JU</i> |
|----------------------------|-------------|----------------|----------------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - | - |
| Aerosol | - | <i>JR</i> | <i>JU</i> |
| $dN_{\text{wol}}/d \log r$ | <i>St-1</i> | <i>St-1</i> | <i>St-1</i> |
| Wolkenoberrand | 1000 m | 1000 m | 1000 m |
| Wolkenunterrand | 600 m | 600 m | 600 m |

Tabelle 5.12: Modelleingabe zur Untersuchung der Aerosolsensitivität in bewölkter Atmosphäre.

ziert. Im unteren Teil der Wolke wird F_{act} jedoch erhöht. Die maximale Erhöhung innerhalb der Wolke erfolgt in 600 m Höhe bei $\lambda = 505$ nm und beträgt 9.5%.

Die 0%-Isolinie verläuft unterhalb der Wolke bei $\lambda = 292$ nm in 600 m Höhe. Bei $\lambda = 500$ nm befindet sich die 0%-Isolinie in 250 m Höhe und steigt mit zunehmender Wellenlänge etwas an. Bei $\lambda = 850$ nm ist sie in 350 m Höhe. Unterhalb der 0%-Isolinie vermindern die Aerosolpartikel F_{act} . Die maximale Verminderung unterhalb der Wolke erfolgt in Bodennähe bei $\lambda = 292$ nm und beträgt 21%.

Im Vergleich zum linken Teil der Abb. 5.12 ist erkennbar, dass die Wolke den Einfluss des ruralen Aerosols reduziert. Auch die Wellenlängenabhängigkeit der Abweichung wird abgeschwächt. Der Aerosoleinfluss des nur schwach absorbierenden ruralen Aerosols *JR* wirkt sich in einer Erhöhung der Streuung im Vergleich zur aerosolfreien Atmosphäre aus. Auch die Wolkentropfen führen zu einer Erhöhung der Streuung. Da die Extinktion durch Wolkentropfen wesentlich größer ist als die Extinktion von Aerosolpartikeln, überwiegt der Einfluss der Wolkentropfen. Durch die starke Reduktion von F_{act} innerhalb der Wolke ist F_{act} beim Eindringen in die Aerosolschicht bereits so stark vermindert, dass die Streuung an den Aerosolpartikeln nur noch zu geringeren Auswirkungen auf das Strahlungsfeld führen kann im Vergleich zu den Aerosoleffekten in wolkenfreien Bedingungen.

Abb. 5.30 zeigt die Differenz zwischen $F_{\text{act,dir}}$ und $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1-JR* und *St-1* in 50 m Höhe (strich-punktierte Linie), am Wolkenunterrand in 600 m (gestrichelte Linie), am Wolkenoberrand in 1000 m Höhe (gepunktete Linie) und in 2000 m Höhe

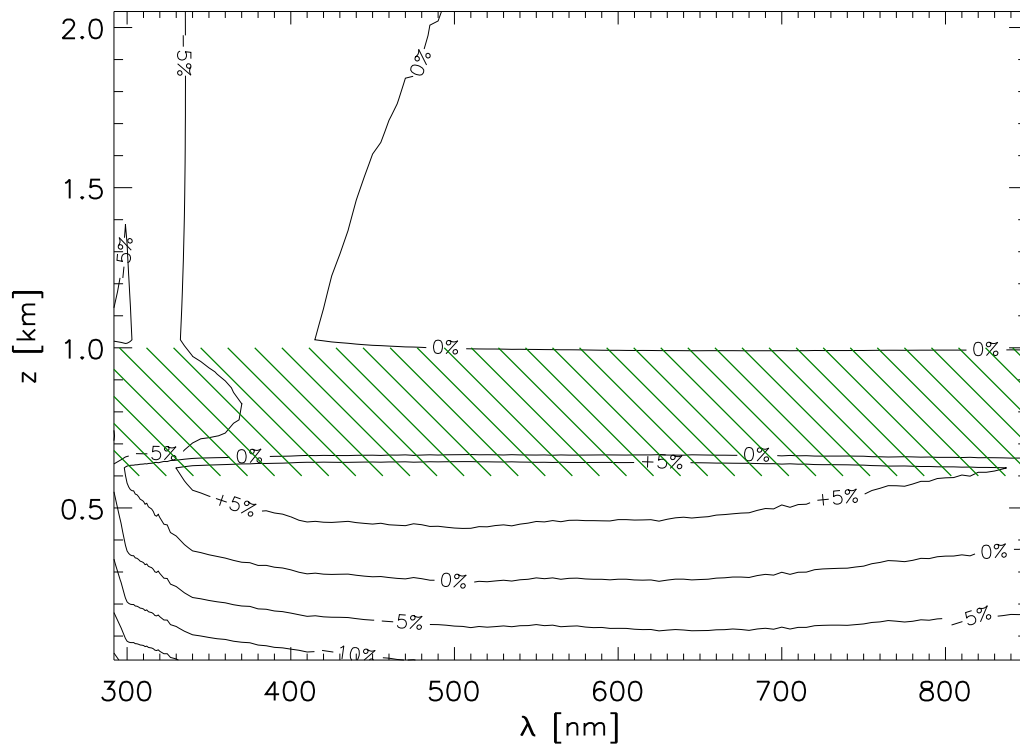


Abbildung 5.29: ΔF_{act} von F_{act} aus *St-1-JR* zu F_{act} aus *St-1* in Abhängigkeit von λ und z .

(durchgezogene Linie) aufgeteilt in den direkten (links) und diffusen Anteil von F_{act} (rechts).

Oberhalb der Wolke in 2000 m Höhe ist der direkte Anteil von F_{act} aus *St-1* größer als F_{act} aus *St-1-JR*. Am Oberrand der Wolke in 1000 m ist der Betrag der Differenz zwischen $F_{\text{act,dir}}$ aus *St-1-JR* und $F_{\text{act,dir}}$ aus *St-1* größer als in 2000 m Höhe. Das bedeutet, dass $F_{\text{act,dir}}$ in der aerosolbelasteten Atmosphäre *St-1-JR* stärker reduziert wird als in *St-1*. Verursacht ist dies von der Extinktion an den Aerosolpartikeln.

Unterhalb der Wolke in 600 m und 50 m verschwindet $F_{\text{act,dir}}$ bei beiden Simulationen, d.h. kein direktes Licht kann die Wolkenschicht passieren. Somit ist auch die Differenz null.

Der diffuse Anteil von F_{act} aus *St-1-JR* ist in 2000 m Höhe und bei $\lambda > 420$ nm größer als $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1*. Am Wolkenoberrand in 1000 m Höhe ist die Differenz zwischen $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1-JR* und $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1* größer als in 2000 m Höhe. Dies ist durch die erhöhte Streuung an den Aerosolpartikeln verursacht.

In 1000 m Höhe ist bei Wellenlängen $\lambda > 365$ nm $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1-JR* größer als

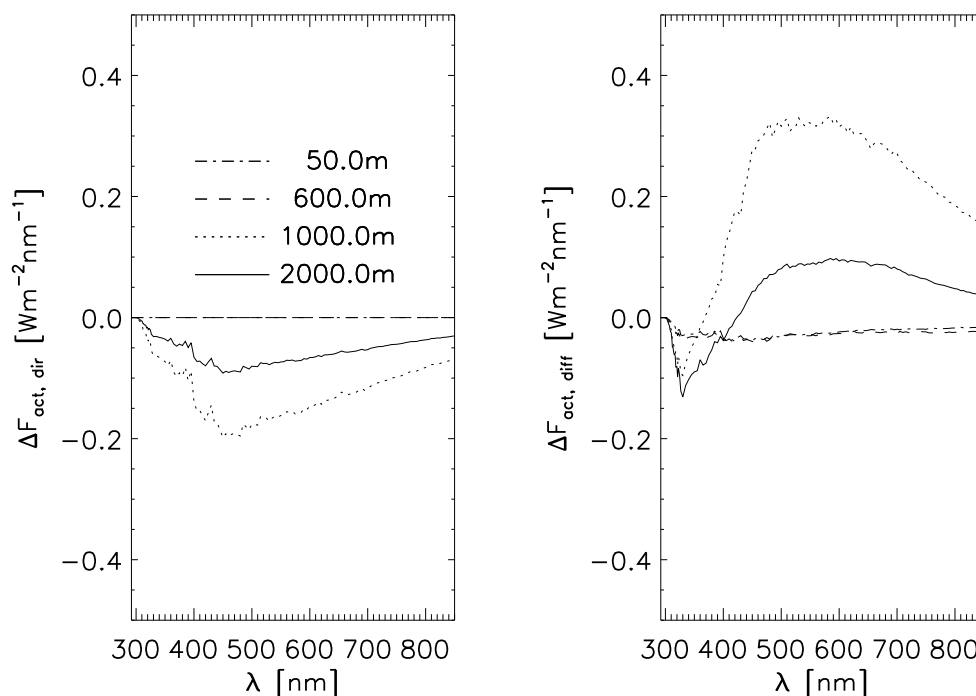


Abbildung 5.30: ΔF_{act} am Boden als Differenz zwischen F_{act} aus *St-1-JR* und F_{act} aus *St-1* aufgespalten in $F_{\text{act,dir}}$ (links) und $F_{\text{act,diff}}$ (rechts) in Abhängigkeit von λ .

$F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1*. Das bedeutet, dass durch die Anwesenheit der Aerosolpartikel das Reflektionsvermögen der Wolke erhöht wird. Bei $\lambda < 365$ nm wird $F_{\text{act,diff}}$ durch den Aerosoleinfluss in *St-1-JR* reduziert.

Unterhalb der Wolke ist $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1-JR* etwas geringer als $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1*.

Abb. 5.31 beschreibt die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses der mit urbanem Aerosol belasteten Atmosphäre *St-1-JU* zur aerosolfreien Atmosphäre *St-1*. Der Einfluss des urbanen Aerosols führt bei allen Wellenlängen und in allen Höhen zu einer Reduktion des aktinischen Flusses. Verursacht ist dies von der hohen Absorption durch die urbanen Aerosolpartikel. Die Reduktion des aktinischen Flusses ist sehr stark von der Wellenlänge abhängig.

Im Vergleich zum rechten Teil der Abb. 5.12 ist erkennbar, dass die Wolke den Einfluss des Aerosols und auch die Wellenlängenabhängigkeit der Abweichung verstärkt. Der Erhöhung der Streuung an den Aerosolpartikeln steht bei urbanem Aerosol in *JU* eine starke Reduktion von F_{act} auf Grund der erhöhten Absorption gegenüber. Die Wolkentropfen führen zu einer Erhöhung der Streuung, so dass der Photonenweg durch die Atmosphäre verlängert wird. Dadurch wird die Wahrscheinlichkeit

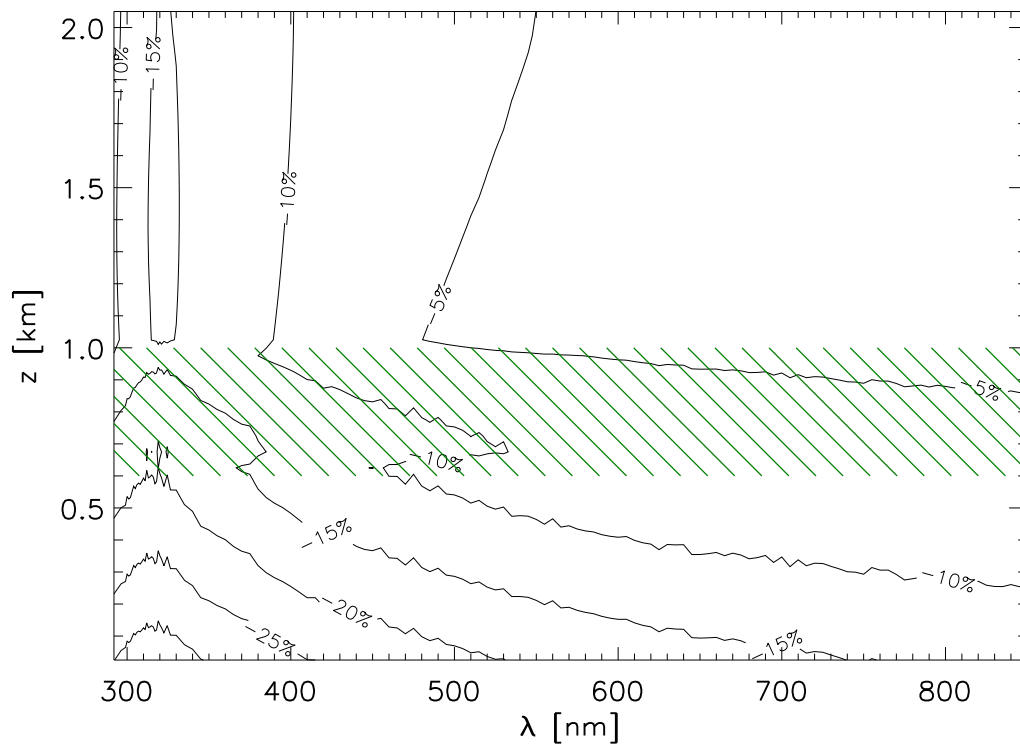


Abbildung 5.31: ΔF_{act} von F_{act} aus *St-1-JU* zu F_{act} aus *St-1* in Abhängigkeit von λ und z .

von Absorption erhöht, so dass bei Anwesenheit von urbanen Aerosolpartikeln in bewölkter Atmosphäre F_{act} stärker reduziert wird als in unbewölkter Atmosphäre. Abb. 5.32 zeigt die Differenz zwischen F_{act} aus *St-1-JU* und *St-1* in 50 m Höhe (strichpunktierte Linie), am Wolkenunterrand in 600 m (gestrichelte Linie), am Wolkenoberrand in 1000 m Höhe (gepunktete Linie) und in 2000 m Höhe (durchgezogene Linie) aufgeteilt in den direkten (links) und diffusen Anteil von F_{act} (rechts).

$F_{\text{act,dir}}$ wird in *St-1-JU* weniger reduziert als in *St-1-JR*. Dies ist von der geringeren Extinktion des urbanen Aerosols (vgl. Abb. 5.11) im Vergleich zu ruralem Aerosol verursacht.

$F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1-JU* ist nahezu in allen Höhen kleiner als $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1*. Lediglich bei $\lambda > 600$ nm und $z = 1000$ m ist $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1-JU* etwas größer als $F_{\text{act,diff}}$ aus *St-1*. Verursacht ist dies durch das hohe Absorptionsvermögen der urbanen Aerosolpartikel.

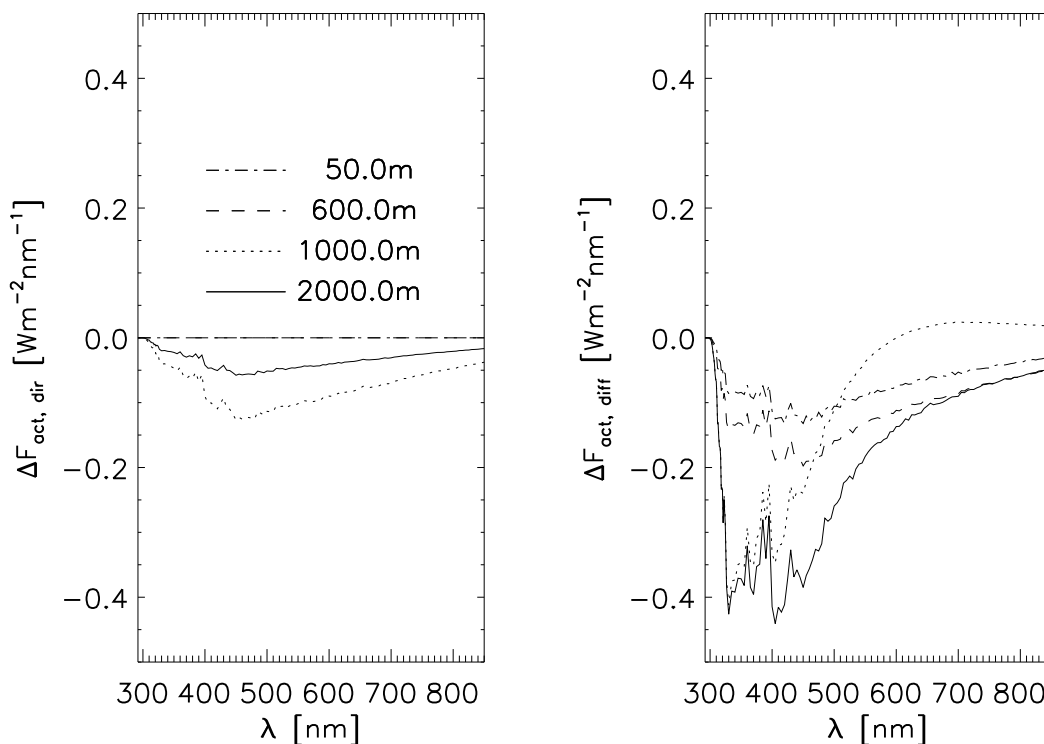


Abbildung 5.32: ΔF_{act} am Boden als Differenz zwischen F_{act} aus *St-1-JU* und F_{act} aus *St-1* aufgespalten in $F_{\text{act,dir}}$ (links) und $F_{\text{act,diff}}$ (rechts) in Abhängigkeit von λ .

5.5.4 Übereinanderliegende Wolkenschichten

Im Folgenden wird nun der Einfluss übereinanderliegender Wolkenschichten untersucht. Dazu wurde der aktinische Fluss dreier Simulationen miteinander verglichen, bei welchen die optischen Dicken aufintegriert über die gesamte Atmosphäre jeweils identisch waren. Die vertikale Position der Wolkenschichten wurde jedoch variiert. Es wurden zwei Bewölkungssituationen untersucht, bei welchen jeweils zwei Wolkenschichten übereinanderlagen. Die untere Wolke war in beiden Fällen zwischen 600 m und 800 m positioniert. Die obere Wolke lag in einem Fall in 900 m bis 1100 m Höhe (*2Lv-low*) und im anderen Fall in 1000 m bis 1200 m Höhe (*2Lv-high*). Damit ist die Lücke zwischen den Wolken in *2Lv-low* kleiner als in *2Lv-high*. Zum Vergleich wurde wiederum *St-1* mit einer vertikalen Erstreckung der Wolke von 400 m in 600 m bis 1000 m Höhe herangezogen. Einen Überblick über die verwendeten Eingabedaten des Modells bietet Tab. 5.13.

Abb. 5.33 zeigt die Ergebnisse der Simulationen. Im linken Teil der Abbildung

| Simulation | <i>St-1</i> | <i>2Lv-low</i> | <i>2Lv-high</i> |
|----------------------------|-------------|----------------|-----------------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - | - |
| Aerosol | - | - | - |
| $dN_{\text{wol}}/d \log r$ | <i>St-1</i> | <i>St-1</i> | <i>St-1</i> |
| Wolke 1 | | | |
| Oberrand | 1000 m | 800 m | 800 m |
| Unterrand | 600 m | 600 m | 600 m |
| Wolke 2 | | | |
| Oberrand | - | 1100 m | 1200 m |
| Unterrand | - | 900 m | 1000 m |

Tabelle 5.13: Modelleingabe zur Untersuchung der Auswirkung zweier Wolkenschichten.

ist der Absolutwert von F_{act} bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ aus *St-1* (durchgezogene Linie), aus *2Lv-low* (gepunktete Linie) und aus *2Lv-high* (gestrichelte Linie) dargestellt. Die unterschiedliche vertikale Erstreckung der Wolkenschichten ist durch die grau schattierten Kästchen innerhalb der Abbildung angedeutet.

Der rechte Teil der Abb. 5.33 zeigt die prozentuale Abweichung von F_{act} aus *2Lv-low* und *2Lv-high* zu F_{act} aus *St-1*.

Zunächst zeigt sich, dass F_{act} oberhalb von 1200 m und unterhalb von 800 m bei allen drei Simulationen identisch ist. Die Erhöhung von F_{act} oberhalb der Wolken und die Verminderung unterhalb der Wolke ist also unabhängig von der Position der Wolke und wird lediglich von der optischen Dicke der Wolke bestimmt.

Im Höhenbereich zwischen 800 m und 1200 m ergeben sich jedoch Veränderungen von F_{act} . Betrachtet man zunächst den aktinischen Fluss der Simulation *2Lv-high*, so erkennt man im oberen Bereich der oberen Wolke das typische Maximum auf Grund der erhöhten Streuung bei noch fast unverminderter direkter Strahlung. Innerhalb der oberen Wolke nimmt der aktinische Fluss ab. In der Lücke zwischen den Wolken ist der aktinische Fluss nahezu konstant. Beim Eintritt der Strahlung in die untere Wolke entsteht kein relatives Maximum mehr, ähnlich, wie in den Fällen mit größerem Sonnenzenitwinkel (siehe Abb. 5.27). Durch die Extinktion in der obo-

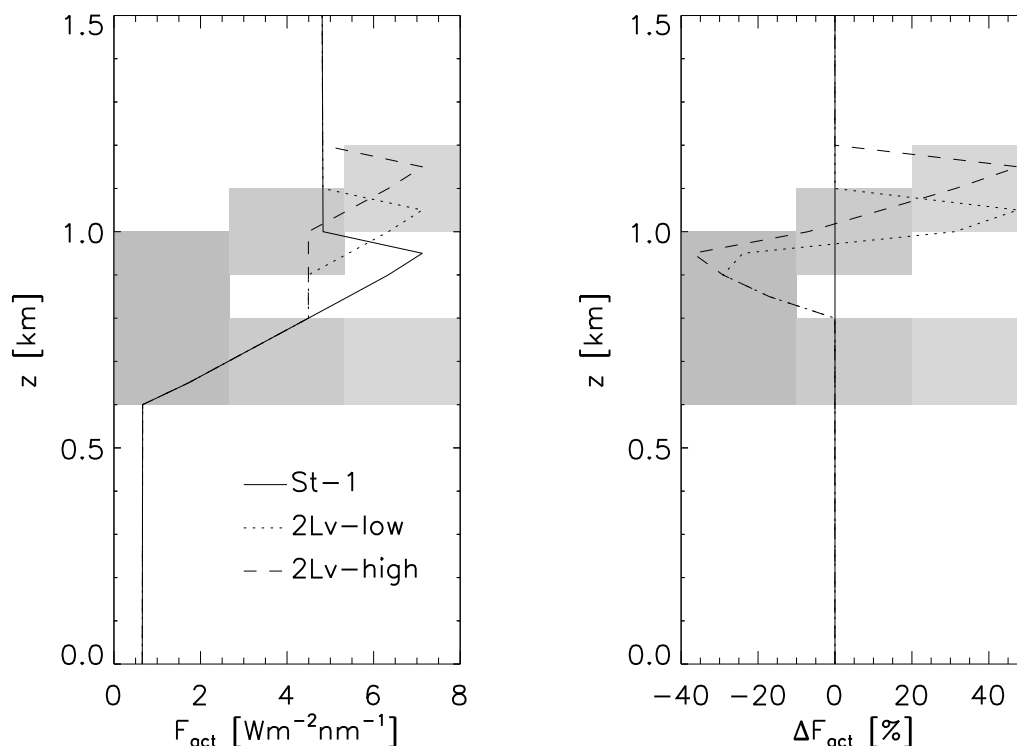


Abbildung 5.33: Vertikalprofil von F_{act} bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ (links) und prozentuale Abweichung ΔF_{act} (rechts) von *2Lv-low* und *2Lv-high* zu *St-1* in Abhängigkeit von z .

ren Wolke ist der direkte Anteil der Strahlung bereits so stark reduziert, dass das Maximum am Oberrand der unteren Wolke nicht mehr auftritt. Die optische Dicke der Wolke vom Oberrand der Atmosphäre bis in 800 m Höhe der Simulation *St-1* ist identisch zu der Simulation *2Lv-high*. Deshalb sind auch die resultierenden aktinischen Flüsse dieser Simulationen identisch. Das Verhalten des aktinischen Flusses der Simulation *2Lv-low* ist analog.

5.5.5 Vertikal veränderlicher Flüssigwassergehalt

Die bisherigen Sensitivitätsstudien sind von einem vertikal konstanten Flüssigwassergehalt entsprechend den Angaben in der Tab. 2.3 ausgegangen. Realistischer ist jedoch die Annahme, dass der Flüssigwassergehalt mit zunehmender Wolkenhöhe zunimmt. Die Auswirkungen einer solchen Wolke auf den Strahlungshaushalt sollen in diesem Abschnitt untersucht werden. Dazu wurde für die Simulation *LWC-lin* eine Wolke mit linear ansteigendem Flüssigwassergehalt von 0.11 gm^{-3} in 600 m

bis zu 0.33 gm^{-3} in 1000 m entsprechend des adiabatischen Flüssigwassergehalts in Gl. (4.9) erzeugt. Der aktinische Fluss aus *LWC-lin* wurde mit F_{act} aus *St-1* verglichen. Der Flüssigwasserweg als Integral des Flüssigwassergehalts über die vertikale Erstreckung der Wolke ist dabei in beiden Fällen gleich 88 gm^{-2} . Einen Überblick

| Simulation | <i>St-1</i> | <i>LWC-lin</i> |
|-------------------------|----------------------|----------------------|
| T, p, rh | MidLatSum | MidLatSum |
| ϑ_0 | 30° | 30° |
| A_G | 0.1 | 0.1 |
| O_3 | 308 DU | 308 DU |
| NO_2 | - | - |
| Aerosol | - | - |
| $Q_l(z=600 \text{ m})$ | 22 gm^{-3} | 11 gm^{-3} |
| $Q_l(z=1000 \text{ m})$ | 22 gm^{-3} | 33 gm^{-3} |

Tabelle 5.14: Modelleingabe zur Untersuchung der Sensitivität von Wolken mit linear zunehmendem Flüssigwassergehalt.

über die verwendeten Eingabedaten des Modells bietet Tab. 5.14.

Der linke Teil der Abb. 5.34 zeigt den Absolutwert von F_{act} bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ aus *St-1* (durchgezogene Linie) und aus *LWC-lin* (gepunktete Linie). Der rechte Teil der Abb. 5.34 beschreibt ΔF_{act} von F_{act} aus *LWC-lin* zu F_{act} aus *St-1*.

Da der Modenradius der Wolkentropfen konstant gehalten wurde, befinden sich in der Simulation *LWC-lin* im oberen Teil der Wolke mehr Wolkentropfen und im unteren Teil der Wolke weniger Wolkentropfen als bei der Simulation *St-1*. Auf Grund der größeren Tropfenanzahl im oberen Teil der Wolke ist die Erhöhung von F_{act} oberhalb der Wolke bei der Simulation *LWC-lin* größer als bei der Simulation *St-1*. In 2 km Höhe beträgt $\Delta F_{\text{act}} +3.2\%$.

Die starke Verminderung von F_{act} unterhalb der Wolke ist auf die Zunahme der optischen Dicke bei *LWC-lin* zurückzuführen. Die optische Dicke der Wolke bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ in *LWC-lin* ist $\tau_{\text{wol}} = 72.13$. Im Vergleich dazu ist in *St-1* $\tau_{\text{wol}} = 48.13$. Die Ursache für die größere optische Dicke in *LWC-lin* kann mit Hilfe der Definition von τ in Gl. (2.48) erklärt werden. Die Bestimmung des Extinktionskoeffizienten β_{ext} , über welchen in Gl. (2.48) integriert wird, erfolgt über Gl. (2.31). In Gl. (2.31) geht die logarithmische Normalverteilung der Wolkentropfen $dN_{\text{dro}}/d \log r$ ein. Nimmt nun, wie in der Simulation *LWC-lin*, die Partikelanzahl linear mit der

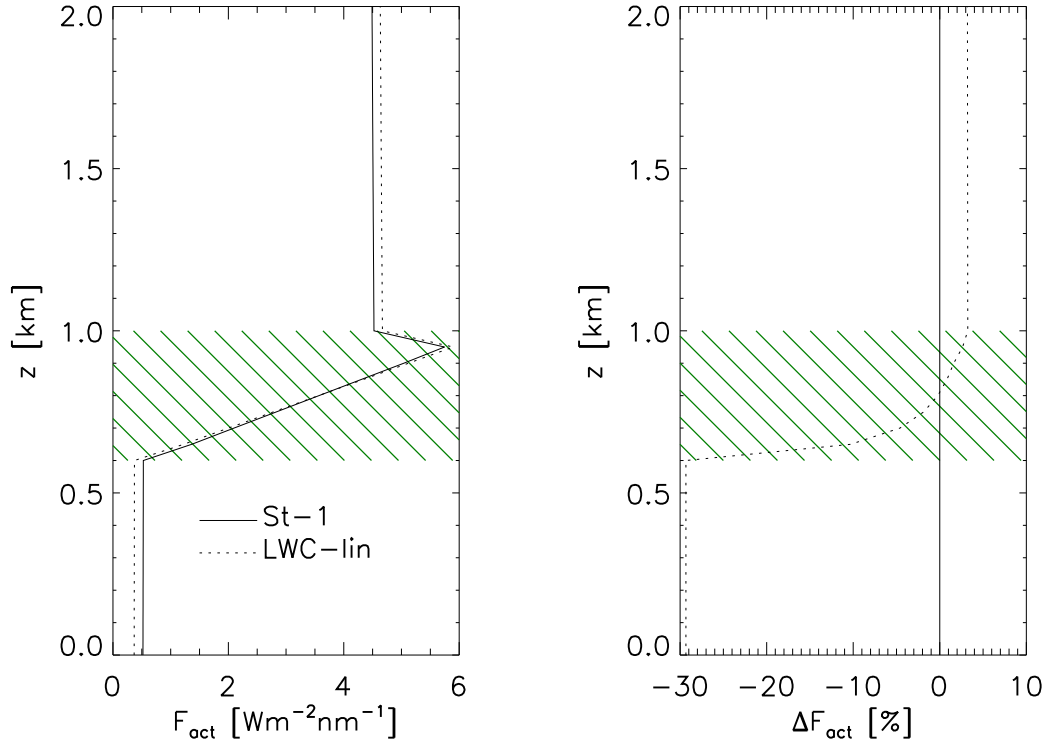


Abbildung 5.34: Vertikalprofil von F_{act} bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ (links) und prozentuale Abweichung ΔF_{act} (rechts) von *LWC-lin* zu *St-1* in Abhängigkeit von z .

Höhe zu ($N_{\text{dro}} = Az + B$), so ergibt sich durch die Integration in Gl. (2.48) ein quadratischer Zusammenhang mit der Höhe:

$$\tau(z) = \int_z^{\infty} N_{\text{dro}} \int_0^{\infty} \frac{dn_{\text{dro}}}{d \log r} \sigma_{\text{ext}}(x, m) d \log r dz'. \quad (5.3)$$

Das wiederum hat zur Folge, dass die größere Partikelanzahl im oberen Teil der Wolke einen größeren Einfluss auf die optische Dicke hat als die geringere Partikelanzahl im unteren Teil der Wolke. Aus diesem Grund ist die optische Dicke der Simulation *LWC-lin* größer als τ_{wol} in *St-1*. Dies führt bei *LWC-lin* zu einer Reduktion von F_{act} unterhalb der Wolke von 29.3% im Vergleich zum F_{act} aus *St-1*.

Die Veränderungen von F_{act} bei Verwendung eines mit der Höhe linear ansteigenden Flüssigwasserprofils zeigen deutlich, dass die vertikale Verteilung des Flüssigwasseranteils einen sehr großen Einfluss auf das Strahlungsfeld hat.

5.6 Weitere Sensitivitätsstudien

Weitere Sensitivitätsstudien bezüglich des $J(\text{NO}_2)$ wurden in *Früh et al.* (2000a) und *Früh et al.* (2000b) durchgeführt. Hier sollen nur die wesentlichen Ergebnisse dieser Untersuchungen vorgestellt werden.

Die Wahl der spektralen Konstanten, wie dem extraterrestrischen Fluss S_0 , dem Absorptionsquerschnitt σ_{NO_2} und der Quantenausbeute $\phi_{\text{NO}+\text{O}}$ hat einen Einfluss auf das simulierte $J(\text{NO}_2)$ -Profil. Bei Verwendung des Absorptionsquerschnittes nach *DeMore et al.* (1997) anstatt σ_{NO_2} nach *Mérienne et al.* (1995) wird das $J(\text{NO}_2)$ -Profil über die gesamte Höhe um etwa 4% reduziert. Bei Verwendung von σ_{NO_2} von *DeMore et al.* (1997) und S_0 aus *WMO-Report* (1986) wird das $J(\text{NO}_2)$ -Profil um etwa 5% im Vergleich zum $J(\text{NO}_2)$ -Profil bei Verwendung von σ_{NO_2} nach *Mérienne et al.* (1995) und S_0 nach *VanHoosier* (1996) reduziert. Bei Verwendung des Spektrums aus *WMO-Report* (1986) für den extraterrestrischen Fluss zusammen mit dem Absorptionsquerschnitt von *Mérienne et al.* (1995) wird das $J(\text{NO}_2)$ -Profil um etwa 1% reduziert. Die Veränderung des $J(\text{NO}_2)$ -Profils bei Verwendung der unterschiedlichen spektralen Konstanten ist in wolkenloser und bewölkter Atmosphäre annähernd gleich. Daher ist sie nicht von der Anzahl von Streuprozessen in der Atmosphäre abhängig. Tab. 5.15 fasst die verwendeten Kombinationen der

| S_0 | σ_{NO_2} | Abweichung |
|------------|------------------------|------------|
| Atlas3 | <i>Mérienne et al.</i> | - |
| Atlas3 | <i>DeMore et al.</i> | -4% |
| WMO-Report | <i>DeMore et al.</i> | -5% |
| WMO-Report | <i>Mérienne et al.</i> | -1% |

Tabelle 5.15: Abweichungen des $J(\text{NO}_2)$ -Profils bei Verwendung unterschiedlicher Kombinationen für S_0 und σ_{NO_2} .

Spektren zusammen.

Bei einer Atmosphäre mit realistischem Aerosolgehalt (vgl. Abschnitt 6.3) führt die Anwesenheit von ruralem Aerosol zu einer Erhöhung nahezu des gesamten $J(\text{NO}_2)$ -Profils von etwa 3% bis 4%. Innerhalb der untersten Schichten der Atmosphäre wird $J(\text{NO}_2)$ jedoch um etwa 6% reduziert (*Früh et al.*, 2000a). Die Erhöhung von $J(\text{NO}_2)$ auf Grund des Aerosolgehaltes der Atmosphäre ist durch eine Erhöhung der diffusen Strahlung im Vergleich zur aerosolfreien Atmosphäre verursacht. Dieser Effekt ist besonders deutlich bei niedrigem Sonnenstand, bei dem die Erhöhung der

diffusen Strahlung den damit einhergehenden Verlust der direkten Strahlung durch Vielfachstreuung kompensiert (*Dickerson et al.*, 1997).

Die Verwendung von urbanem Aerosol bei gleicher Aerosolanzahlkonzentration führt zu einer Reduktion von $J(\text{NO}_2)$ von ungefähr 2% in 2 km Höhe und etwa 6% in den bodennahen Schichten (*Früh et al.*, 2000a). Grund dafür ist die höhere Absorption des urbanen Aerosols.

In *Früh et al.* (2000b) wurden Sensitivitätsstudien bezüglich des Einflusses der Bodenalbedo auf das $J(\text{NO}_2)$ -Profil vorgenommen. Es zeigte sich, dass bei einer Reduktion von $A_G = 0.023$ auf eine nicht-reflektierende Oberfläche mit $A_G = 0.0$ $J(\text{NO}_2)$ in Bodennähe um 2% reduziert wurde. Mit zunehmender Entfernung von der Erdoberfläche nimmt der Einfluss von A_G ab, so dass in 2 km Höhe $J(\text{NO}_2)$ nur noch um 1% vermindert wird. Die Erhöhung der Bodenalbedo auf $A_G = 0.05$ bewirkt eine Zunahme von $J(\text{NO}_2)$ von 3% am Boden und 1.5% in 2 km Höhe.

5.7 Zusammenfassende Bemerkungen

Abschnitt 5.1 zeigte, dass die Verwendung des δ -Vier-Strom-Verfahren zu einer sehr hohen Genauigkeit der berechneten aktinischen Flüsse und der Photodissoziationsfrequenz von NO_2 führt. Der Vorteil des δ -Vier-Strom-Verfahrens gegenüber dem exakten Diskrete-Ordinaten-Verfahren liegt in der wesentlich geringeren Rechenzeit. Es wurde außerdem darauf eingegangen, dass die Ergebnisse des Strahlungstransportmodells SHDOM ebenfalls sehr gut mit Ergebnissen des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens übereinstimmen.

Die Untersuchung des Ozoneinflusses auf das Strahlungsfeld zeigte, dass nicht nur der Ozongehalt der Atmosphäre, sondern auch das Vertikalprofil der Ozonkonzentration Einfluss auf den aktinischen Fluss nimmt. Dies gilt für den Wellenlängenbereich zwischen $\lambda = 292$ nm und $\lambda = 340$ nm und damit auch für die Photodissoziationsfrequenz von $J(\text{O}({}^1\text{D}))$. Für Wellenlängen größer 340 nm ist das Strahlungsfeld insensitiv gegenüber Veränderungen der Ozonkonzentration. Daher ist auch die Auswirkung auf $J(\text{NO}_2)$ gering. Mit zunehmendem Sonnenzenitwinkel nehmen die Auswirkungen auf das Strahlungsfeld wegen der Verlängerung des Photonenweges durch die Atmosphäre zu.

Die Auswirkungen der Stickstoffdioxid-Absorption auf das Strahlungsfeld sind weit aus geringer als die des Ozons. Sie sind für Standard-Stickstoffdioxid-Konzentrationen und moderate Sonnenzenitwinkel meist vernachlässigbar.

Der Einfluss des Aerosols auf den aktinischen Fluss ist deutlich von der chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel abhängig. Rurales Aerosol mit einem relativ geringen Absorptionsvermögen erhöht den aktinischen Fluss oberhalb der Aerosolschicht und vermindert den aktinischen Fluss im unteren Bereich der Aerosolschicht. Urbanes Aerosol dagegen reduziert den aktinischen Fluss in allen Höhenbereichen auf Grund des hohen Absorptionsvermögens der Aerosolpartikel. Eine Verminderung der Aerosolanzahlkonzentration vermindert die Auswirkungen auf das Strahlungsfeld. Eine Erhöhung der Aerosolanzahlkonzentration verstärkt die Auswirkungen auf den aktinischen Fluss. Auch eine Veränderung der Aerosolgrößenverteilung wirkt sich deutlich auf das Strahlungsfeld aus, da sich dadurch die Aerosolanzahlkonzentration in dem für die Strahlung besonders sensitiven Radiusbereich der Partikel verändert. Durch eine Veränderung des Vertikalprofils der relativen Feuchte verändert sich sowohl der Brechungsindex der Aerosolpartikel durch die Vermischung mit Wasser als auch die Aerosolgrößenverteilung. Dadurch wird auch der aktinische Fluss verändert. Die Löslichkeit der Aerosolpartikel hat hingegen eine geringe Auswirkung auf das Strahlungsfeld.

Die Veränderung des aktinischen Flusses durch Wolken ist wesentlich größer als die durch Aerosolpartikel. Der aktinische Fluss wird oberhalb und im oberen Teil der Wolke stark erhöht und unterhalb der Wolke stark reduziert. Dabei ist die optische Dicke für den Betrag der Erhöhung oberhalb und die Verminderung unterhalb der Wolke verantwortlich. Der Sonnenzenitwinkel dagegen verändert die Form des Vertikalprofils des aktinischen Flusses.

Der Einfluss von ruralem Aerosol in bewölkter Atmosphäre vermindert die Auswirkungen des Aerosols im Vergleich zum unbewölkten Fall. Urbanes Aerosol in bewölkter Atmosphäre dagegen verstärkt die Auswirkungen des Aerosols. Bei zwei übereinanderliegenden Wolken-schichten, welche die gleiche optische Dicke wie eine einzelne Wolke haben, nimmt der aktinische Fluss oberhalb der oberen Wolke und unterhalb der unteren Wolke den Wert des aktinischen Flusses der Simulation mit nur einer Wolke an.

In den Sensitivitätsstudien hat sich ebenfalls ganz deutlich gezeigt, dass das Vertikalprofil des Flüssigwassergehalts einer Wolke von entscheidender Bedeutung ist. Dies ist vor allem für die Anwendung von Satellitendaten interessant, über welche der Flüssigwasserweg einer Wolke bestimmt werden kann. Sofern keine weiteren Informationen über die vertikale Verteilung des Flüssigwassergehalts vorhanden sind,

kann dies zu sehr großen Abweichungen in den berechneten Strahlungsfeldern, vor allem unterhalb der Wolken, führen.

Kapitel 6

Evaluierung des 1-dimensionalen Modells

Zur Evaluierung des 1-dimensionalen Strahlungstransportmodells konnten die Resultate der Modellrechnungen mit verschiedenen Messungen und anderen Strahlungstransportmodellen verglichen werden.

Zunächst wurde in Abschnitt 6.1 ein spektraler Vergleich der Simulationsergebnisse mit Ergebnissen des Strahlungstransportmodells von *Mayer* (1996) und *Mayer et al.* (1997) in unbewölkter Atmosphäre durchgeführt.

In Abschnitt 6.2 wird das Vertikalprofil des simulierten aktinischen Flusses Messungen von *Vilà-Guerau et al.* (1994) in bewölkter Atmosphäre gegenübergestellt.

Im abschließenden Abschnitt 6.3 wird der Vergleich von gemessenen Photodissoziationsfrequenzen von Stickstoffdioxid mit Simulationsergebnissen gezeigt. Dabei konnte auf Flugzeugmessungen bei wolkenfreien und bewölkten Bedingungen zurückgegriffen werden.

6.1 Spektraler Vergleich des aktinischen Flusses am Boden

In der Zeit vom 15.6.1998 bis 19.6.1998 fand in Boulder, Colorado, USA, (39.95°N, 105.20°W) die IPMMI-Kampagne („International Photolysis Measurement and Model Intercomparison“) statt. Boulder liegt in einer Höhe von etwa 1.8 km über dem Meeresspiegel. Aufgrund dieser hohen Lage und des daraus resultierenden Bodendruckes befindet sich gewöhnlich eine verhältnismäßig optisch dünne Aerosolschicht

über diesem Messort. Der Einfluss des Aerosols auf den aktinischen Fluss in Bodennähe ist daher relativ unbedeutend.

Bei dieser Kampagne wurden Messungen und Modellrechnungen des nach unten gerichteten aktinischen Flusses und der nach unten gerichteten Strahlungsflussdichte durchgeführt. Zusätzlich wurden die Vertikalprofile der Temperatur, des Druckes, der relativen Feuchte und der Ozonkonzentration gemessen, welche den Strahlungstransportmodellen als Eingabe dienten. Außerdem standen die Gesamtozonsäule, die optische Dicke des Aerosols und die Tagesgänge der Temperatur und des Druckes am Boden zur Verfügung.

Die Ergebnisse dieses Vergleichs sind bisher noch nicht veröffentlicht. Dennoch konnte ein Vergleich des in Kap. 4 vorgestellten Strahlungstransportmodells mit Simulationsergebnissen von Mayer (pers. Mitteilung, 2000) für den aktinischen Fluss durchgeführt werden. Beide Modellpakete nutzten dabei als Eingabe die während der IPMMI-Kampagne gemessenen Eingabedaten.

Das Modellpaket von Mayer (1996) und Mayer *et al.* (1997) zeigte bei einem Vergleich mit Messungen in wolkenfreier Atmosphäre sehr gute Übereinstimmung. Die Messungen, mit denen das Modellpaket verglichen wurde, stammten aus einer zweijährigen Messreihe der Strahlungsflussdichte am Boden, welche in Garmisch-Partenkirchen aufgezeichnet wurde. Im Wellenlängenbereich zwischen 295 nm und 400 nm lagen die Abweichungen zu den gemessenen Spektren der Strahlungsflussdichte innerhalb von -11% bis +2% bei Sonnenzenitwinkeln kleiner 80° (Mayer *et al.*, 1997).

6.1.1 Das Vergleichsmodell

Das Vergleichsmodell besteht aus dem Modellpaket „libRadtran 0.13“ (Mayer und Kylling, pers. Mitteilung, 2000, verfügbar unter www.libradtran.org), welches drei unterschiedliche Lösungsmethoden der Strahlungstransportgleichung enthält: zum einen das plan-parallele Diskrete-Ordinaten-Verfahren (Stamnes *et al.*, 1988), welches von einer plan-parallelen Atmosphäre ausgeht und mit *BM1* bezeichnet wird, zum anderen das pseudo-sphärische Diskrete-Ordinaten-Verfahren (Dahlback und Stamnes, 1991), welches die Sphärizität der Atmosphäre berücksichtigt (*BM2*) und zum dritten ein Monte-Carlo-Verfahren (Mayer *et al.*, 1998), welches mit *BM3* bezeichnet wird.

Abb. 6.1 zeigt für 06:05 UTC (oben) und für 12:05 UTC (unten) die prozentuale Abweichung des aktinischen Flusses berechnet mit *BM3* (links) und *BM2* (rechts)

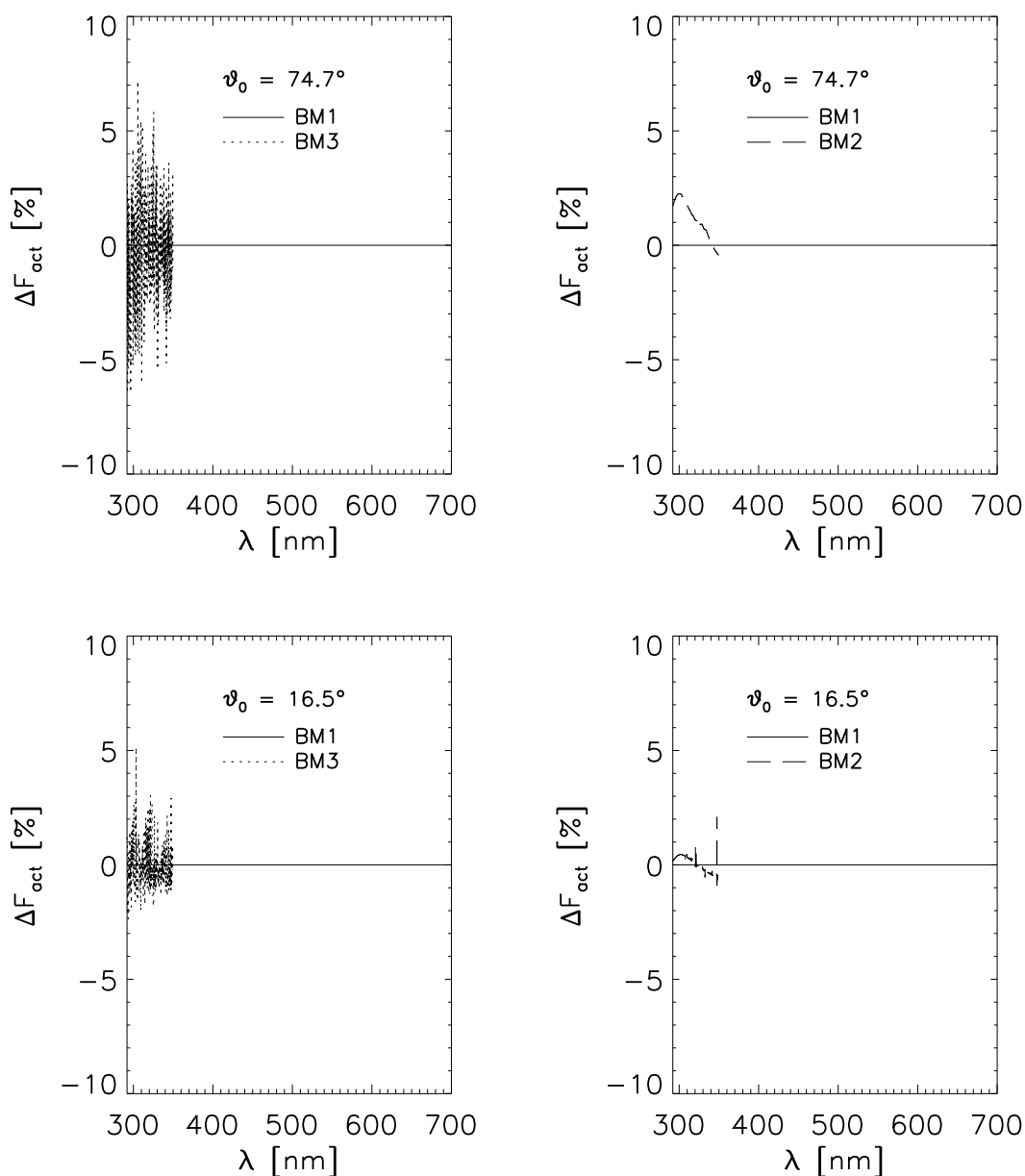


Abbildung 6.1: ΔF_{act} um 06:05 UTC (oben) und um 12:05 UTC (unten) von F_{act} aus *BM3* (links) und *BM2* (rechts) zu F_{act} aus *BM1* von Mayer (pers. Mitteilung, 2000).

zu F_{act} aus *BM1* (Mayer, pers. Mitteilung, 2000).

Aus dieser Abbildung wird ersichtlich, dass der aktinische Fluss aus *BM3* lediglich bei Wellenlängen $\lambda < 350$ nm Unterschiede zu F_{act} aus *BM1* aufweist. Ebenso zeigt diese Abbildung, dass die Abweichungen bei größerem Sonnenzenitwinkel größer sind, aber im Wesentlichen $\pm 5\%$ betragen.

Abweichungen von F_{act} aus *BM2* zu F_{act} aus *BM1* existieren wiederum nur bei Wellenlängen $\lambda < 350$ nm. Sie sind geringer als die Abweichungen von F_{act} aus *BM3* zum aktinischen Fluss aus *BM1* und betragen im Wesentlichen +2% bis -1%.

Wegen der geringen Unterschiede der einzelnen Strahlungstransportmodelle von *Mayer* (pers. Mitteilung, 2000) zueinander ist es ausreichend, den Vergleich mit dem in Kap. 4 beschriebenen Modell mit den Ergebnissen einer Lösungsvariante von „libRadtran 0.13“ durchzuführen. Dazu wurden die Resultate von *BM1* gewählt.

Die Wellenlängenaufösung des Vergleichsmodells *BM1* betrug im Bereich zwischen 280 nm und 700 nm $\Delta\lambda = 1$ nm. Im Wellenlängenbereich zwischen 280 nm und 350 nm wurde zur Berechnung der Transmission die Auflösung auf $\Delta\lambda = 0.5$ nm verfeinert. Gewichtet mit dem extraterrestrischen Fluss, welcher mit einer Auflösung von $\Delta\lambda = 0.05$ nm zur Verfügung stand, wurde daraus die Transmission für ein Wellenlängenintervall von $\Delta\lambda = 1$ nm integriert.

6.1.2 Die Modelleingabe

Zum Vergleich der Modellergebnisse wurde das in Kap. 4 vorgestellte Modell, sowohl mit der Lösungsmethode des δ -Vier-Strom-Verfahrens (*MM-4Str*) als auch mit der Lösungsmethode des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens (*MM-16Str*) verwendet. Als Eingabedaten für die Modelle dienten die während der IPMMI-Kampagne gewonnenen Daten vom 19.6.1998. Dieser Tag war wolkenfrei. Die Ozonsäule betrug 306 DU. Die optische Dicke des Aerosols bei $\lambda = 550$ nm war 0.030.

Zur Bestimmung des mittleren Zustandes der Atmosphäre oberhalb der von der Messsonde erreichten Höhe von 35 km wurden die Temperatur, der Druck, die relative Feuchte und die Ozonkonzentration der US-Standard-Atmosphäre nach *McClatchey et al.* (1971) verwendet.

Zur Beschreibung des atmosphärischen Aerosolgehaltes wurde zunächst vom Vertikalprofil der Aerosolanzahlkonzentration von *McClatchey et al.* (1971) für eine klare Atmosphäre mit einer Sichtweite von 23 km ausgegangen. Für die chemische Komposition der Aerosolpartikel wurde der urbane Aerosoltyp nach *Shettle und Fenn* (1979) angenommen, da sich aus den Messungen ein hohes Absorptionsvermögen der Aerosolpartikel ergab. Für die Aerosolgrößenverteilung wurden die Verteilungsparameter des urbanen Aerosols nach *Jaenicke* (1988) verwendet. Das Aufquellen der Aerosolpartikel wurde entsprechend der Köhler-Theorie (Gl. (2.14)) und dem gemessenen Vertikalprofil der relativen Feuchte berücksichtigt. Anschließend wurde

die Aerosolanzahlkonzentration auf die Sichtweite von 167 km skaliert, um die angegebene optische Dicke des Aerosols von $\tau_{\text{aer}} = 0.030$ bei $\lambda = 550$ nm zu erzielen. Die Berechnung der Normsichtweite S_n ergibt sich über folgenden Zusammenhang (Mütze *et al.*, 1961):

$$S_n = \frac{3.91}{\beta_{\text{ext}}}, \quad (6.1)$$

wobei sich der Extinktionskoeffizient β_{ext} aus den Extinktionskoeffizienten der einzelnen Extingenten entsprechend Gl. (2.47) zusammensetzt. Um die Sichtweite von $S_n = 167$ km zu erzielen, wurde der Extinktionskoeffizient des Aerosols $\beta_{\text{ext,aer}}$ in Gl. (2.47) durch den Extinktionskoeffizienten $\beta_{\text{aer,skal}}$:

$$\beta_{\text{aer,skal}} = \frac{3.91}{S_n} - \beta_{\text{ray}} - \beta_{\text{O}_3} \quad (6.2)$$

ersetzt.

Für die Bodenalbedo wurde bei Wellenlängen $\lambda \leq 420$ nm der Wert $A_G = 0.03$ und bei $\lambda > 420$ nm der Wert $A_G = 0.1$ angenommen.

Der extraterrestrische Fluss entspricht bis zu einer Wellenlänge von $\lambda = 407.8$ nm dem Atlas-3-Spektrum (VanHoosier, 1996). Im anschließenden Wellenlängenbereich bis $\lambda = 419.9$ nm wurde das Atlas-2-Spektrum aus Woods *et al.* (1996) verwendet. Für Wellenlängen $\lambda > 419.9$ nm wurden die Angaben aus dem *WMO-Report* (1986) eingesetzt. Der Absorptionsquerschnitt von Ozon wurde Molina und Molina (1986) entnommen.

Dadurch beruhen sowohl *MM-4Str*, als auch *MM-16Str* und das Vergleichsmodell *BM1* auf denselben Datensätzen für die Eingabe und die spektralen Konstanten. Auch die Wellenlängenaufösung wurde in Übereinstimmung gebracht. Lediglich die Verfeinerung der Wellenlängenintervalle auf $\Delta\lambda = 0.5$ nm zur Berechnung der Transmission im Wellenlängenbereich zwischen 280 nm und 350 nm wurde nicht durchgeführt, da dies eine Veränderung der Struktur des Lösungsalgorithmus verursacht hätte. *MM-4Str* und *MM-16Str* berechneten damit das Spektrum zwischen $\lambda = 291.5$ nm und $\lambda = 850.5$ nm mit einer Auflösung von $\Delta\lambda = 1$ nm. Dies sind notwendige Voraussetzungen für die Durchführung eines Vergleichs.

6.1.3 Ergebnisse des Modellvergleichs

Im folgenden Abschnitt sollen die Ergebnisse dieser Vergleichsstudie an Hand zweier Spektren durchgeführt werden. Dazu wurden zwei Spektren mit möglichst unterschiedlichen Sonnenzenitwinkeln verwendet. Zum einen ein Spektrum von 06:05 UTC

mit einem großen Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 74.7^\circ$ und zum anderen ein Spektrum von 12:05 UTC mit einem kleinen Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 16.5^\circ$.

06:05 UTC

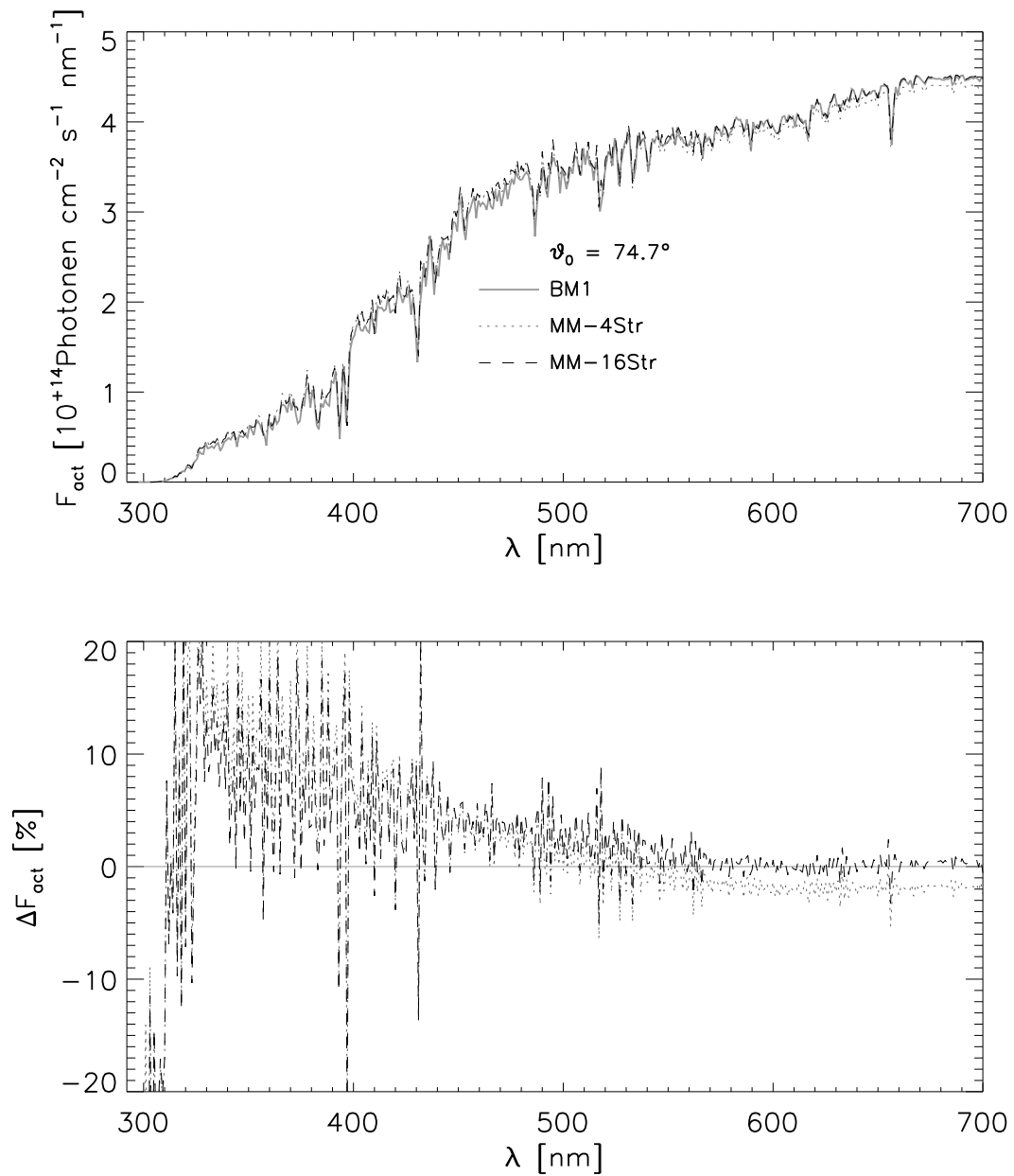


Abbildung 6.2: F_{act} und ΔF_{act} um 06:05 UTC von F_{act} aus *MM-4Str* und *MM-16Str* zu F_{act} aus *BM1*.

Abb. 6.2 enthält im oberen Teil die Absolutwerte des aktinischen Flusses für die Simulation von 06:05 UTC mit einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 74.7^\circ$. Dargestellt ist mit der grauen, durchgezogenen Linie der aktinische Fluss der Vergleichssimulation *BM1*, mit der gepunkteten F_{act} aus *MM-4Str* und mit der gestrichelten Linie der aktinische Fluss aus *MM-16Str*.

Der untere Teil der Abb. 6.2 zeigt die prozentualen Abweichungen von F_{act} aus *MM-4Str* (gepunktete Linie) und aus *MM-16Str* (gestrichelte Linie) zum aktinischen Fluss aus *BM1*.

Zunächst zeigt sich, dass die Abweichungen bei Wellenlängen $\lambda < 310$ nm groß sind. Im Wellenlängenbereich zwischen $\lambda = 310$ nm und $\lambda = 500$ nm nehmen die Abweichungen von anfänglich etwa 10% auf etwa 2% ab. Bei Wellenlängen $\lambda > 500$ nm ist die Abweichung kleiner $\pm 1\%$.

Wie bereits in Abschnitt 5.1 gezeigt unterschätzt das δ -Vier-Strom-Verfahren den aktinischen Fluss des Diskrete-Ordinaten-Verfahrens bei Wellenlängen $\lambda > 450$ nm um wenige Prozent. Diese Unterschätzung zeigt sich auch ganz deutlich in Abb. 6.2. Der aktinische Fluss aus *MM-4Str* unterschätzt *BM1* und *MM-16Str* etwa um 2%. Deutlich zu sehen ist dies in der unteren Abb. 6.2 bei Wellenlängen $\lambda > 580$ nm.

Außerdem wird deutlich, dass die Abweichungen starken Schwankungen unterliegen. Verursacht ist dies bei Wellenlängen bis $\lambda = 350$ nm zum einen durch die feinere Auflösung bei der Berechnung der Transmission im Vergleichsmodell *BM1*. Eine weitere Ursache dieser Schwankungen liegt darin begründet, dass die Mittelpunkte der Wellenlängenintervalle, für welche die Strahlungstransportgleichung gelöst wird, in *BM1* im Vergleich zu *MM-4Str* und *MM-16Str* um 0.5 nm verschoben sind. Aus diesem Grund mußte zur Berechnung der prozentualen Abweichung des aktinischen Flusses von *MM-4Str* und *MM-16Str* zu F_{act} aus *BM1* der Mittelwert des aktinischen Flusses zweier benachbarter Wellenlängenintervalle aus *BM1* verwendet werden. Da jedoch der aktinische Fluss im Wellenlängenbereich zwischen $\lambda = 290$ nm und $\lambda = 450$ nm mit zunehmender Wellenlänge sehr stark zunimmt, verursacht auch die Bildung des Mittelwertes Schwankungen in der prozentualen Abweichung, welche im unteren Teil der Abb. 6.2 erkennbar sind.

12:05 UTC

Abb. 6.3 enthält im oberen Teil die Absolutwerte des aktinischen Flusses für die Simulation von 12:05 UTC mit einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 16.5^\circ$. Dargestellt

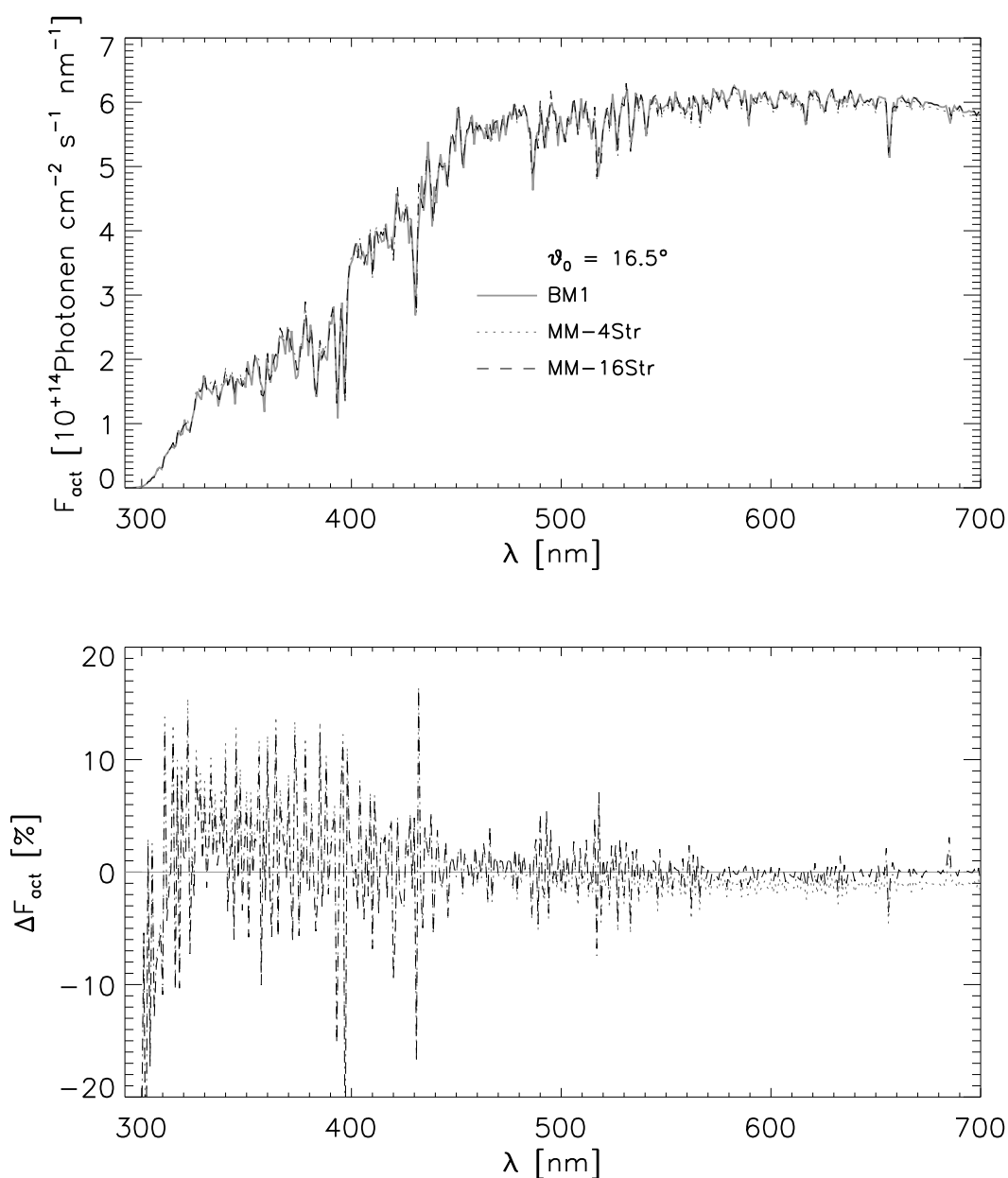


Abbildung 6.3: F_{act} und ΔF_{act} um 12:05 UTC von F_{act} aus *MM-4Str* und *MM-16Str* zu F_{act} aus *BM1*.

sind mit der grauen, durchgezogenen Linie der aktinische Fluss der Vergleichssimulation *BM1*, mit der gepunkteten die Simulationsergebnisse aus *MM-4Str* und mit der gestrichelten Linie der aktinische Fluss aus *MM-16Str*.

Der untere Teil der Abb. 6.3 zeigt die prozentualen Abweichungen des aktinischen Flusses aus *MM-4Str* (gepunktete Linie) und *MM-16Str* (gestrichelte Linie) zu F_{act}

aus *BM1*.

Wiederum zeigt sich, dass die Abweichungen bei Wellenlängen $\lambda < 320$ nm sehr groß sind. Bei Wellenlängen $\lambda > 320$ nm nehmen die Abweichungen von anfänglich etwa 5% allmählich auf $\pm 1\%$ Prozent ab. Die Übereinstimmung bei kleinerem Sonnenzenitwinkel ist damit besser als bei größerem Sonnenzenitwinkel. Die Unterschätzung des aktinischen Flusses bei der Verwendung des δ -Vier-Strom-Verfahrens beträgt hier nur etwa 1%.

6.1.4 Zusammenfassende Bemerkungen

In diesem Abschnitt wurde gezeigt, dass die Ergebnisse des in Kap. 4 vorgestellten Strahlungstransportmodells für unterschiedliche Sonnenzenitwinkel sehr gut mit anderen Strahlungstransportmodellen übereinstimmen.

Da das zum Vergleich verwendete Modellpaket „libRadtran 0.13“ bereits bei Vergleichen mit anderen Strahlungstransportmodellen und auch mit Messungen der Strahlungsflussdichte am Boden sehr gute Übereinstimmung (*Mayer et al.*, 1997) zeigte, kann gefolgert werden, dass auch das in Kap. 4 vorgestellte Strahlungstransportmodell zuverlässige Ergebnisse liefert.

6.2 Vergleich simulierter und gemessener Vertikalprofile von F_{act} in bewölkter Atmosphäre

Eine weitere Evaluierung des Strahlungstransportmodells bezüglich des aktinischen Flusses wurde mit gemessenen Vertikalprofilen des aktinischen Flusses (*Vilà-Guerau et al.*, 1994) durchgeführt. Die Fesselballonmessungen fanden im Juni 1992 auf Santa Maria (25.17°W, 39.99°N) einer Insel der Azorengruppe statt. Die Lage des Messstandortes impliziert maritimen Einfluss, sowohl was die Zusammensetzung und Größenverteilung der Aerosolpartikel, als auch die Größenverteilung der Wolkentropfen betrifft. Da der Einfluss der Aerosolpartikel bei Anwesenheit von Wolken im Wesentlichen innerhalb der Messungenauigkeiten des photoelektrischen Detektors liegt, wird bei dieser Untersuchung auf die Beschreibung des Aerosoleinflusses vollständig verzichtet. Zur Beschreibung der meteorologischen Verhältnisse diente das Temperatur- und Druckprofil der Standardatmosphäre für einen Sommertag in mittleren Breiten (*McClatchey et al.*, 1971). Entsprechend den Angaben in *Vilà-Guerau et al.* (1994) wurde eine Bodenalbedo von 5% angenommen.

Der für diese Messung verwendete photoelektrische Detektor deckt den Spektralbereich von 330 nm bis 390 nm ab. *Vilà-Guerau et al.* (1994) nahmen an, dass der aktinische Fluss in diesem Spektralbereich wellenlängenunabhängig sei. Verglichen wird der in diesem Spektralbereich gemessene aktinische Fluss mit Simulationsergebnissen des δ -Vier-Strom-Verfahrens für die drei Wellenlängen $\lambda = 330$ nm, 360 nm und 390 nm.

Aus den in *Vilà-Guerau et al.* (1994) tabellierten Fällen wurden für die Evaluierung des Modells zwei Situationen ausgewählt, bei welchen nahezu vollständige Bedeckung durch Schichtwolken herrschte. Sie unterscheiden sich in der vertikalen Position und der geometrischen Ausdehnung der Wolke. Unter dem Einfluss von stratiformen Bewölkungssituationen lassen die 1-dimensionalen Strahlungstransportmodelle eine gute Qualität der Resultate erwarten.

6.2.1 Optisch dicke Wolke

Der erste Fall (*Thick-Cloud*) entspricht Fall 5 in *Vilà-Guerau et al.* (1994) und enthält eine Wolke mit einer vertikalen Ausdehnung von 250 m, die sich in 550 m bis 900 m Höhe befand. Der Sonnenzenitwinkel betrug $\vartheta_0 = 38^\circ$.

Da keine Informationen bezüglich der Größenverteilung der Wolkentropfen vorlagen, wurde die in *Vilà-Guerau et al.* (1994) angegebene optische Dicke der Wolke von $\tau_{\text{wol}} = 23 \pm 4$ in der Simulation durch einen vertikal konstanten Flüssigwassergehalt von $Q_l = 0.21 \text{ gm}^{-3}$ und einem effektiven Tropfenradius von $r_{\text{eff}} = 5.9 \mu\text{m}$ erzielt. Dabei wurde eine logarithmische Normalverteilung für die Wolkentropfenverteilung entsprechend Gl. (2.26) angenommen.

Abb. 6.4 zeigt das Vertikalprofil des aktinischen Flusses für den Fall *Thick-Cloud*. Die Rauten (\diamond) stehen dabei für den gemessenen aktinischen Fluss des aufsteigenden Fesselballons $F_{\text{act,up}}$ und die Pluszeichen (+) für die Messwerte während des Abstiegs $F_{\text{act,do}}$. Das schattierte Gebiet entspricht der geometrischen Ausdehnung der Wolke. Die durchgezogene Linie stellt den simulierten aktinischen Fluss bei $\lambda = 330$ nm $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$, die gepunktete Linie $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ und die gestrichelte Linie $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ dar.

Abb. 6.4 zeigt deutlich, dass der aktinische Fluss im Wellenlängenintervall zwischen 330 nm und 390 nm stark variiert. Insbesondere das Vertikalprofil von $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ weicht sowohl oberhalb, als auch unterhalb der Wolke sehr stark von den Vertikalprofilen von $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ ab.

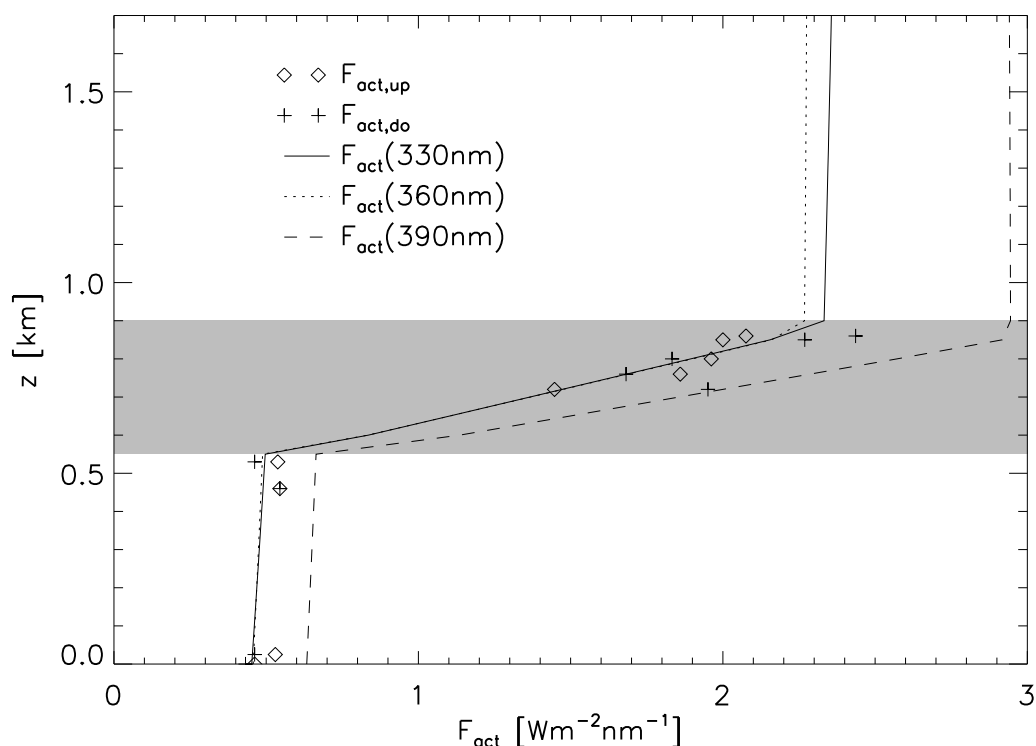


Abbildung 6.4: Vertikalprofil der gemessenen Werte von $F_{\text{act,up}}$ und $F_{\text{act,do}}$ und der simulierten Größen $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$, $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ aus *Thick-Cloud*.

| z, m | $\Delta F_{\text{act}}(330 \text{ nm}), \%$ | $\Delta F_{\text{act}}(360 \text{ nm}), \%$ | $\Delta F_{\text{act}}(390 \text{ nm}), \%$ |
|------|---|---|---|
| 25 | -14.2 | -13.4 | 19.7 |
| 530 | -8.0 | -9.5 | 23.2 |
| 860 | 5.5 | 5.1 | 40.8 |
| z, m | $\Delta F_{\text{act}}(330 \text{ nm}), \%$ | $\Delta F_{\text{act}}(360 \text{ nm}), \%$ | $\Delta F_{\text{act}}(390 \text{ nm}), \%$ |
| 25 | -1.6 | -0.7 | 37.4 |
| 530 | 7.2 | 5.4 | 43.5 |
| 860 | -10.1 | -10.5 | 19.9 |

Tabelle 6.1: Prozentuale Abweichung von $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$, $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ zu $F_{\text{act,up}}$ (oben) bzw. $F_{\text{act,do}}$ (unten) in Bodennähe, unmittelbar unter der Wolke und am Wolkenoberrand aus *Thick-Cloud*.

Der obere Teil der Tab. 6.1 enthält die prozentuale Abweichung der simulierten aktinischen Flüsse $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$, $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ zu den Messungen von $F_{\text{act,up}}$ während des Fesselballonaufstiegs. Der untere Teil der Tab. 6.1 enthält die

entsprechenden Angaben für $F_{\text{act,do}}$ für den Fesselballonabstieg.

Die maximale Abweichung der Simulationsergebnisse zu den Messdaten wird bei der Wellenlänge 390 nm erreicht. Die anderen beiden Profile für $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ zeigen für die aufsteigende Fesselballonmessung die größten Abweichungen am Boden mit etwa 14%. In 530 m und 850 m Höhe sind die Abweichungen der Simulationsergebnisse von $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ zu den Messungen des Profils von $F_{\text{act,up}}$ kleiner 10%. Beim Fesselballonabstieg sind die Abweichungen für $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ zum Profil von $F_{\text{act,do}}$ in 860 m Höhe mit 10% am größten.

Die Veränderung von F_{act} vom aufsteigenden zum absteigenden Fesselballonprofil betrug in Bodennähe -12.8%, unterhalb der Wolke -14.1% und am Wolkenoberrand +17.4%. Daher liegen die Abweichungen zu den simulierten aktinischen Flüssen innerhalb der Messgenauigkeit bzw. der zeitlichen Veränderung der Atmosphäre.

6.2.2 Optisch dünne Wolke

Der Fall *Thin-Cloud* entspricht Fall 8 in *Vilà-Guerau et al.* (1994). Untersuchungsgegenstand ist dabei eine dünnere Wolke in grösserer Höhe (zwischen 1350 m und 1600 m). Der Sonnenzenitwinkel zum Zeitpunkt der Messung war $\vartheta_0 = 67^\circ$. Für den effektiven Radius wurde wie in der Simulation *Thick-Cloud* $r_{\text{eff}} = 5.9 \mu\text{m}$ angenommen. Für den Flüssigwassergehalt der optisch dünneren Wolke in *Thin-Cloud* wurde $Q_l = 0.16 \text{ gm}^{-3}$ verwendet. Dadurch ergibt sich die in *Vilà-Guerau et al.* (1994) angegebene optische Dicke von $\tau_{\text{wol}} = 13 \pm 3$.

Abb. 6.5 zeigt das Vertikalprofil von F_{act} für *Thin-Cloud*. Die Verwendung der Zeichen und Linientypen entspricht denen in *Thick-Cloud*.

Der obere Teil der Tab. 6.2 enthält die prozentuale Abweichung der simulierten aktinischen Flüsse $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$, $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ zu den Messungen von $F_{\text{act,up}}$ während des Fesselballonaufstiegs. Der untere Teil der Tab. 6.2 enthält die entsprechenden Angaben für $F_{\text{act,do}}$ für den Fesselballonabstieg.

Die maximale Abweichung zu den Messdaten wird wiederum durch das Vertikalprofil von $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ erzeugt. $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ zeigen die größten Abweichungen ebenfalls wieder in Bodennähe.

Die Veränderung der Messdaten zwischen dem Aufstieg und Abstieg des Fesselballons ist jedoch auch hier wieder größer als die Abweichung zu den simulierten Profilen von $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ und beträgt in Bodennähe +68.9%. In

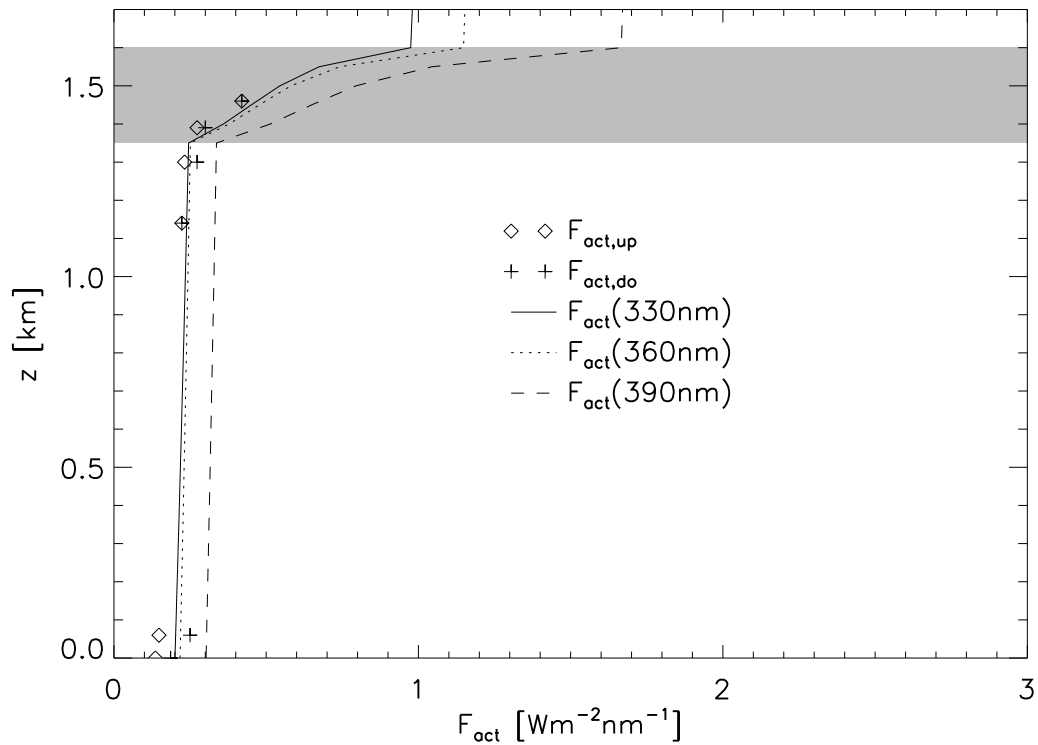


Abbildung 6.5: Vertikalprofil der gemessenen Werte von $F_{\text{act,up}}$ und $F_{\text{act,do}}$ und der simulierten Größen $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$, $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ aus *Thin-Cloud*.

| z, m | $\Delta F_{\text{act}}(330 \text{ nm}), \%$ | $\Delta F_{\text{act}}(360 \text{ nm}), \%$ | $\Delta F_{\text{act}}(390 \text{ nm}), \%$ |
|------|---|---|---|
| 60 | 36.9 | 47.8 | 105.6 |
| 1300 | 5.0 | 7.7 | 44.6 |
| 1460 | 11.9 | 18.6 | 61.5 |
| z, m | $\Delta F_{\text{act}}(330 \text{ nm}), \%$ | $\Delta F_{\text{act}}(360 \text{ nm}), \%$ | $\Delta F_{\text{act}}(390 \text{ nm}), \%$ |
| 60 | -19.0 | -12.5 | 21.7 |
| 1300 | -10.8 | -8.5 | 22.9 |
| 1460 | 11.9 | 18.6 | 61.5 |

Tabelle 6.2: Prozentuale Abweichung von $F_{\text{act}}(330 \text{ nm})$, $F_{\text{act}}(360 \text{ nm})$ und $F_{\text{act}}(390 \text{ nm})$ zu $F_{\text{act,up}}$ (oben) bzw. $F_{\text{act,do}}$ (unten) in Bodennähe, unmittelbar unter der Wolke und am Wolkenoberrand aus *Thin-Cloud*.

1300 m Höhe verändert sich der gemessene aktinische Fluss lediglich noch um 17.7% und in 1460 m ist er konstant.

6.2.3 Vergleich der beiden Szenarien

Ein Vergleich der beiden Wolkensimulationen *Thick-Cloud* und *Thin-Cloud* zeigt zunächst die geringeren Absolutwerte von F_{act} aus *Thin-Cloud*. Dies ist auf den größeren Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 67^\circ$ im Vergleich zu $\vartheta_0 = 38^\circ$ bei *Thick-Cloud* zurückzuführen. Der über die drei Wellenlängen gemittelte aktinische Fluss F_{act} in den bodennahen Schichten erreicht bei *Thick-Cloud* Werte von $0.5 \text{ Wm}^{-2}\text{nm}^{-1}$, wogegen bei *Thin-Cloud* der aktinische Fluss lediglich Werte von $0.2 \text{ Wm}^{-2}\text{nm}^{-1}$ annimmt. Abhängig von der Wellenlänge werden oberhalb der Wolke bei *Thick-Cloud* aktinische Flüsse von etwa $2.3 \text{ Wm}^{-2}\text{nm}^{-1}$ bis $2.9 \text{ Wm}^{-2}\text{nm}^{-1}$, bei *Thin-Cloud* dagegen lediglich Werte von $1 \text{ Wm}^{-2}\text{nm}^{-1}$ bis $1.7 \text{ Wm}^{-2}\text{nm}^{-1}$ erreicht.

Unterhalb der Wolke wird F_{act} aus *Thick-Cloud* bei allen dargestellten Wellenlängen im Vergleich zur wolkenfreien Atmosphäre um 55% reduziert. Bei *Thin-Cloud* dagegen beträgt die Reduktion von F_{act} 58% bis 67%. Die Reduktion von F_{act} durch den Einfluss der Wolke ist im optisch dickeren Medium der Simulation *Thick-Cloud* mit einer optischen Dicke von $\tau_{\text{wol}} \approx 20$ geringer als im Fall der optisch dünnere Wolke in *Thin-Cloud* mit einer optischen Dicke von $\tau_{\text{wol}} \approx 11$. Betrachtet man jedoch nicht die optische Dicke τ_{wol} nach Gl. (2.48), sondern die optische Dicke entlang des Strahlweges $\tau_{s,1D}$ nach Gl. (5.2), so erkennt man, dass in *Thick-Cloud* $\tau_{s,1D} \approx 25$ ist. In *Thin-Cloud* ist $\tau_{s,1D} \approx 28$. Das geringere $\tau_{s,1D}$ in *Thick-Cloud* hat eine geringere Transmission zur Folge.

Oberhalb der Wolke beträgt die Erhöhung von F_{act} in *Thick-Cloud* im Vergleich zum wolkenfreien Fall 100%. In *Thin-Cloud* dagegen beträgt diese lediglich 60%. Die optisch dickere Wolke hat also eine höhere Reflektivität als die optisch dünnere Wolke. Diese Untersuchung hat gezeigt, dass nicht nur die vom Modell berechneten Bodenwerte des aktinischen Flusses mit Messungen in guter Übereinstimmung liegen, sondern auch deren Vertikalprofile in bewölkter Atmosphäre.

6.3 Vergleich simulierter und gemessener $J(\text{NO}_2)$ -Vertikalprofile

Zum Vergleich der simulierten Vertikalprofile des $J(\text{NO}_2)$ mit beobachteten $J(\text{NO}_2)$ standen Flugzeugmessungen von *Wendisch und Keil* (1999) zur Verfügung. Diese wurden am 6.12., 9.12. und 11.12.1996 in der Nähe von Dresden (14.1°O , 51.2°N) aufgezeichnet.

Der vollständige Datensatz enthält Messungen der Temperatur, des Drucks und der relativen Feuchte. Außerdem wurden die Größenverteilungen der Aerosolpartikel und Wolkentropfen während des Fluges aufgezeichnet. Die Kenntnis dieser Parameter erlaubt eine präzise Bestimmung der optischen Eigenschaften der Atmosphäre, wie die Vertikalprofile der Streu- und Extinktionskoeffizienten, aber auch der Phasenfunktion der Aerosolpartikel und Wolkentropfen, welche zur Berechnung des Strahlungsfeldes und der damit verknüpften Photodissoziationsfrequenzen notwendig ist (*Weihls und Webb, 1997*).

Zur Simulation des Strahlungsfeldes mit dem 1-dimensionalen δ -Vier-Strom-Verfahren wurden die gemessenen Eingabeparameter auf das vertikale Simulationsgitter diskretisiert. Dieses hat eine Auflösung von 20 m vom Boden bis in eine Höhe von 4 km (200 Schichten). Oberhalb von 4 km, bei groberer Vertikalaufösung, wurde die Standardatmosphäre für Winter in den mittleren Breiten (*McClatchey et al., 1971*) angenommen, um den mittleren Zustand der Atmosphäre bis in eine Höhe von 70 km zu beschreiben. Das Ozonprofil wurde mittels eines Radiosondenaufstiegs vom Deutschen Wetterdienst (DWD) in Lindenberg gemessen. Die oberste Messhöhe der Sonde betrug am 6.12. und am 9.12.1996 24 km und am 11.12.1996 32.5 km. Oberhalb dieses Gipfelpunktes wurde für das Ozonprofil wiederum der mittlere Wert für einen Wintertag in den mittleren Breiten nach *McClatchey et al. (1971)* verwendet. Anschließend wurde der obere Teil des Ozonprofils so skaliert, dass die gesamte Ozonsäule der vom Satelliten aus gemessenen Angabe des „Total Ozone Mapping Spectrometer“ (TOMS) für den entsprechenden Tag und die geographische Position entsprach (vgl. Abschnitt 4.4). Für die Reflektion am Boden wird die spektrale Albedo von Gras nach *Bowker et al. (1985)* als Lambertscher Reflektor verwendet. Integrale Messungen der Bodenalbedo im Spektralbereich von 295 nm bis 385 nm zeigten eine sehr gute Übereinstimmung mit diesem Oberflächentyp.

Die Messungen der Aerosolgrößenverteilung führten zum Gesamtaerosolvolumen V_{tot} , dem mittleren Volumenradius $r_{\text{v,aer}}$ der Aerosolpartikel und der dazugehörigen Standardabweichung σ_{aer} in jeder der 200 vertikalen Gitterzellen unterhalb von 4 km Höhe. Die Parameter V_{tot} , $r_{\text{v,aer}}$ und σ_{aer} definieren eine monomodale logarithmische Normalverteilung zur Beschreibung der Aerosolvolumenverteilung:

$$\frac{dV(r)}{d \log r} = \frac{V_{\text{tot}}}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_{\text{aer}}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{\log(r/r_{\text{v,aer}})}{\log \sigma_{\text{aer}}} \right)^2 \right\}. \quad (6.3)$$

Mit der Transformationsbeziehung

$$\frac{dN(r)}{d \log r} = \frac{3}{4\pi} \frac{1}{r^3} \frac{dV(r)}{d \log r} \quad (6.4)$$

lässt sich Gl. (6.3) in die monomodale Anzahlgrößenverteilung Gl. (2.10) überführen. Zur Diskretisierung der Aerosolanzahlgrößenverteilung wurden 40 logarithmisch äquidistante Radiusintervalle im Größenbereich von $0.01 \mu\text{m}$ bis $10 \mu\text{m}$ verwendet. Das Aufquellen der Aerosolpartikel auf Grund der gemessenen relativen Feuchte wurde mit Hilfe der Köhlergleichung Gl. (2.14) simuliert. Die Dichte der Aerosolpartikel, welche zur Bestimmung des Wachstumsprozesses notwendig ist, und der komplexe Brechungsindex des Aerosols entsprechen dem ruralen Aerosoltyp nach *Shettle und Fenn* (1979).

Zur Beschreibung des Wolkeneinflusses wurde der Flüssigwassergehalt Q_l , der mittlere Volumenradius der Wolkentropfen $r_{v,\text{dro}}$ und die entsprechende Standardabweichung σ_{dro} für jede der 200 Schichten bestimmt, was zu einer Massenverteilung der Wolkentropfen führte:

$$\frac{dM(r)}{d \log r} = \frac{Q_l}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_{\text{dro}}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{\log^2(r/r_{v,\text{dro}})}{\log^2 \sigma_{\text{dro}}} \right) \right\}, \quad (6.5)$$

die wiederum mittels

$$\frac{dM(r)}{d \log r} = \rho_w \frac{dV(r)}{d \log r}, \quad (6.6)$$

der Dichte von reinem Wasser ρ_w , und Gl. (6.4) in eine monomodale Anzahlgrößenverteilung umgewandelt werden kann. Zur Diskretisierung der Wolkentropfengrößenverteilung dienten 40 logarithmisch äquidistante Radiusintervalle im Bereich von $0.01 \mu\text{m}$ bis $80 \mu\text{m}$.

Die Berechnung der Streu- und Extinktionskoeffizienten $\sigma_{\text{sca}}(x, n)$ und $\sigma_{\text{ext}}(x, n)$ und der Asymmetrieparamter $g(n)$ in Abhängigkeit von der Höhe erfolgt mit der Mie-Theorie (Gl. (2.32), Gl. (2.31), Gl. (2.35)).

Der zur Lösung der Strahlungstransportgleichung benötigte extraterrestrische Fluss entspricht dem Atlas-3-Spektrum (*VanHoosier*, 1996). Das verwendete Absorptionsspektrum von NO_2 ist *Mérienne et al.* (1995) entnommen.

Die zum Vergleich mit der Simulation verwendeten Photodissoziationsfrequenzen von NO_2 wurden mit einem integrierenden $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometer (*Junkermann et al.*, 1989; *Volz-Thomas et al.*, 1996) aufgezeichnet. Die Verwendung dieses Gerätes und die angebrachten Korrekturen der Messdaten sind detailliert in *Früh et al.* (2000a) erläutert.

Die Flugmessungen der drei Tage 6.12., 9.12. und 11.12.1996 wurden wegen der Länge der Flugzeit jeweils in zwei Flugabschnitte aufgeteilt, wobei einer den aufsteigenden Flugabschnitt und der andere den absteigenden Flugabschnitt beinhaltet. Die atmosphärischen Bedingungen der drei Tage waren unterschiedlich: Am 6.12.1996 war das Gebiet wolkenfrei. Am 9.12.1996 herrschte eine Schichtbewölkung mit einer geometrisch und optisch relativ dicken Wolke vor, wogegen am 11.12.1996 zwar ebenfalls vollständige Bedeckung vorlag, jedoch mit einer geometrisch und optisch wesentlich dünneren Wolke.

| Parameter | 6.12. | 6.12. | 9.12. | 9.12. | 11.12. | 11.12. |
|---|--------|-------|--------|-------|--------|--------|
| | aufst. | abst. | aufst. | abst. | aufst. | abst. |
| Startzeit, UTC | 10:50 | 12:11 | 10:25 | 10:36 | 10:30 | 12:16 |
| Endzeit, UTC | 12:01 | 12:30 | 10:31 | 10:45 | 10:38 | 12:33 |
| ϑ_0 , ° | 74 | 76 | 74 | 74 | 75 | 76 |
| Ozonsäule, DU | 225 | 225 | 262 | 262 | 299 | 299 |
| Wolkenbasis, m | – | – | 480 | 540 | 440 | 420 |
| Wolkenoberrand, m | – | – | 920 | 880 | 600 | 640 |
| \overline{Q}_l , gm^{-3} | – | – | 0.26 | 0.13 | 0.14 | 0.13 |
| Q_p , gm^{-2} | – | – | 115 | 44 | 22 | 29 |
| $\overline{r}_{\text{eff}}$, μm | – | – | 4.1 | 4.2 | 3.5 | 3.7 |

Tabelle 6.3: Allgemeine Beschreibung der sechs Fälle, welche als Eingabe für das Strahlungstransportmodell verwendet wurden. Die Abkürzung „aufst.“ steht für den aufsteigenden und „abst.“ für den absteigenden Flugabschnitt.

In Tab. 6.3 sind die wichtigsten meteorologischen Charakteristika der sechs Flugabschnitte zusammengefasst, welche zum Vergleich der Simulation mit den Messungen herangezogen wurden. Der Sonnenzenitwinkel ϑ_0 der einzelnen Flugabschnitte ergab sich aus dem Mittelwert der Sonnenzenitwinkel für die Startzeit des Flugabschnittes und dessen Endzeit. Der mittlere Flüssigwassergehalt \overline{Q}_l und der mittlere effektive Radius $\overline{r}_{\text{eff}}$ entsprechen den über die vertikale Erstreckung der Wolke gemittelten Profilen von $Q_l(z)$ und $r_{\text{eff}}(z)$. Der Flüssigwasserweg der Wolke Q_p ist das Integral von $Q_l(z)$ über die Wolkenausdehnung. Detailliertere Informationen zur meteorologischen Situation während der Messkampagne sind in *Wendisch und Keil (1999)* enthalten.

6.3.1 Wolkenlose Bedingungen – 6. Dezember 1996

Zunächst soll der unbewölkte Fall am 6.12.1996 behandelt werden. Dabei lässt sich der Einfluss der Aerosolpartikel auf die Photodissoziationsfrequenz von NO_2 untersuchen.

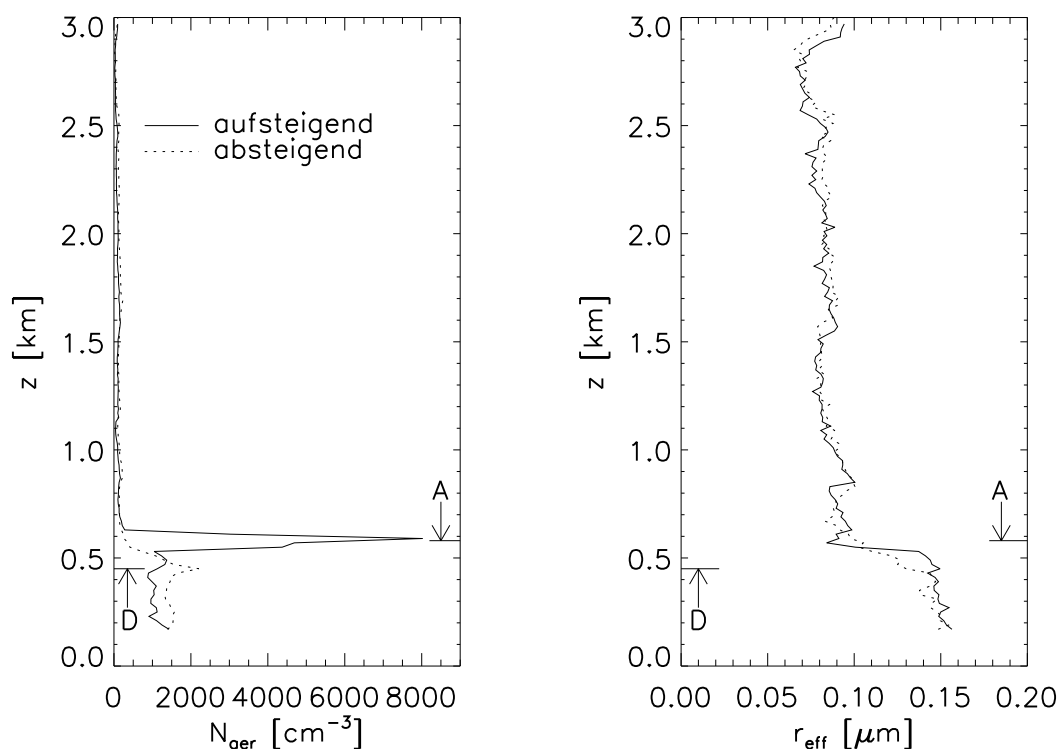


Abbildung 6.6: Gemessenes N_{aer} (links) und r_{eff} (rechts) am 6.12.1996.

Abb. 6.6 zeigt die gemessene Aerosolanzahlkonzentration N_{aer} (links) und den effektiven Radius r_{eff} (rechts) der Aerosolpartikel für die beiden Flugabschnitte in unbewölkter Atmosphäre am 6.12.1996. Die durchgezogene Linie bezieht sich auf den aufsteigenden und die gepunktete Linie auf den absteigenden Flugabschnitt. Die Höhe der Grenzschicht ist durch die beiden Pfeile gekennzeichnet, wobei „A“ für den aufsteigenden und „D“ für den absteigenden Flugabschnitt steht. Für den aufsteigenden Flugabschnitt beträgt die Grenzschichthöhe 580 m und für den absteigenden Flugabschnitt 450 m Höhe.

Abb. 6.6 (links) zeigt deutlich, dass sich der Hauptteil des Aerosols in der Grenzschicht befindet. Im aufsteigenden Flugabschnitt befindet sich ein deutliches Maximum von etwa 8000 cm^{-3} in 600 m Höhe. Im absteigenden Flugabschnitt beträgt

dieses Maximum 2000 cm^{-3} und befindet sich in 400 m Höhe. Oberhalb der Grenzschicht ist die Aerosolanzahlkonzentration wesentlich geringer und beträgt nur wenige hundert Partikel pro cm^3 mit einer leichten Abnahme mit zunehmender Höhe. Die entsprechenden effektiven Radien im rechten Teil der Abb. 6.6 zeigen für den aufsteigenden Flugabschnitt (durchgezogene Linie) und den absteigenden Flugabschnitt (gepunktete Linie) ein nahezu konstantes Profil innerhalb der unteren 500 m von ungefähr $0.15 \mu\text{m}$ und ebenso ein nahezu konstantes Profil darüber bis in etwa 2.5 km Höhe mit einem effektiven Radius von etwa $0.07 \mu\text{m}$.

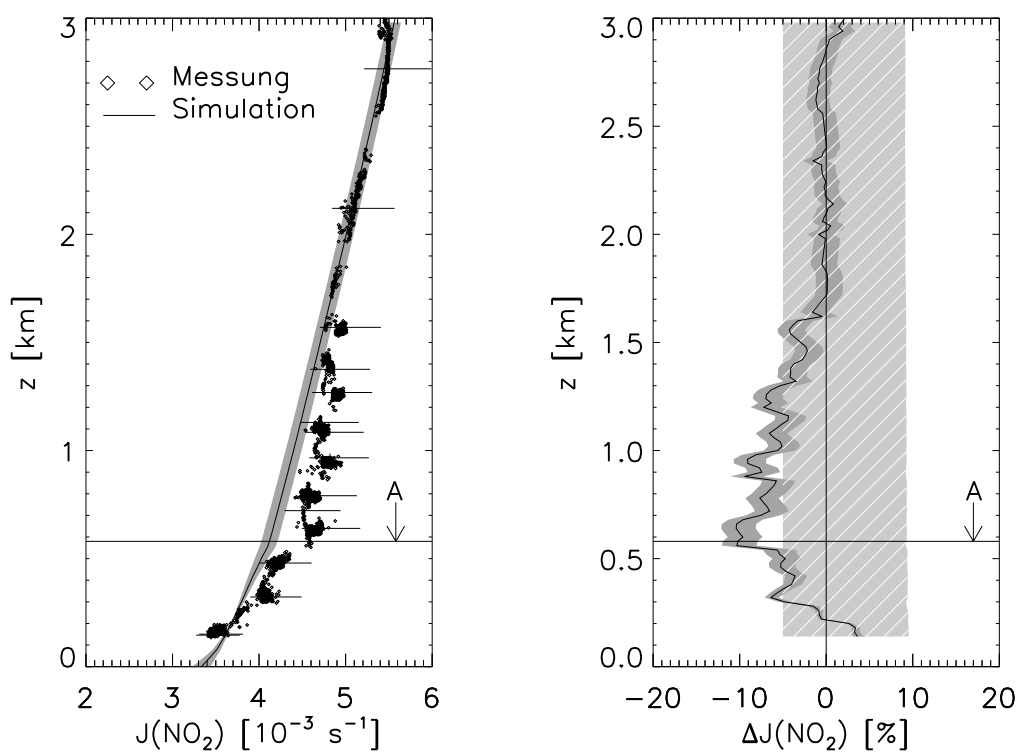


Abbildung 6.7: $J(\text{NO}_2)$ und $\Delta J(\text{NO}_2)$ für den aufsteigenden Flugabschnitt am 6.12.1996. Das graue Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit bei der Bestimmung der Aerosolgrößenverteilung, und das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers.

Abb. 6.7 (links) zeigt $J(\text{NO}_2)$ für den aufsteigenden Flugabschnitt am 6.12.1996. Die Rauten beschreiben die $J(\text{NO}_2)$ -Messwerte. Die Messungenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers sind durch einen horizontalen Fehlerbalken in einigen ausgewählten Höhen markiert. Diese beträgt 10% des Messwertes bei Vorhandensein von direkter und diffuser Strahlung und 5%, wenn lediglich diffuse Strahlung vorhan-

den ist. Bei wolkenlosen Bedingungen beträgt also die Messungenauigkeit für das nach unten gerichtete $J(\text{NO}_2)$ 10% und für das nach oben gerichtete $J(\text{NO}_2)$ 5%. Bei bewölkten Bedingungen ist die Messungenauigkeit innerhalb und unterhalb von Wolken für das nach unten gerichtete $J(\text{NO}_2)$ ebenfalls 5%. Die vertikalen Fehlerbalken repräsentieren die Unsicherheit der barometrischen Höhenbestimmung (± 20 m). Die durchgezogene Linie in Abb. 6.7 (links) zeigt die simulierte Photodissoziationsfrequenz von NO_2 . Das graue Band um die durchgezogene Linie ist ein Fehlerband, welches die Messunsicherheiten der gemessenen Aerosolgrößenverteilung berücksichtigt. Die Messungenauigkeiten bei der Bestimmung der einzelnen Aerosolparameter ergab folgende untere und obere Fehlerschranken (*Früh et al.*, 2000a; *Wendisch et al.*, 1998):

- Für den mittleren Volumenradius $r_{\text{v,aer}}$: -12% bis +15%,
- für das Gesamtaerosolvolumen V_{tot} : -34% bis +51% und
- für die Standardabweichung σ_{aer} : -10% bis +10%.

Um die Abweichungen des $J(\text{NO}_2)$ auf Grund der Unsicherheiten der einzelnen Aerosolparameter zu bestimmen, wurden verschiedene Simulationen durchgeführt, bei denen jeweils ein Parameter um die entsprechende Fehlerschranke erhöht bzw. vermindert wurde und die übrigen beiden Parameter ihren ursprünglichen Wert beibehielten.

Abb. 6.8 zeigt die Abweichungen $\Delta J(\text{NO}_2)$ auf Grund der Unsicherheiten bei der Bestimmung der Aerosolgrößenverteilung. Dabei ist die prozentuale Abweichung der $J(\text{NO}_2)$ -Profile bei Verwendung der unteren Fehlerschranke der Parameter $r_{\text{v,aer}}$ (durchgezogene Linie), V_{tot} (gepunktete Linie) und σ_{aer} (gestrichelte Linie) im Vergleich zum $J(\text{NO}_2)$ -Profil der mittleren Werte der einzelnen Parameter dargestellt. Die Resultate bei Verwendung der oberen Fehlerschranken sind analog, so dass hier auf deren Diskussion verzichtet werden kann. Die Grenzschichthöhe ist wiederum mit dem Pfeil markiert.

In Abb. 6.8 wird deutlich, dass die größten Veränderungen des resultierenden $J(\text{NO}_2)$ -Profils durch die Messungenauigkeit des Gesamtaerosolvolumens verursacht werden. Die Reduktion des Aerosolvolumens um 34% führt zu einer Verminderung der Partikelanzahl. Dies wiederum führt zu einer Reduktion von $J(\text{NO}_2)$ um etwa 1% oberhalb der Grenzschicht und einer Erhöhung von $J(\text{NO}_2)$ bis zu 2% in der bodennahen Schicht. Wegen der Abnahme der Partikelanzahl verringert sich auch die Anzahl der Streuprozesse. Aus diesem Grund wird auch die Photodissoziationsfrequenz von NO_2 oberhalb der Grenzschicht verringert. In der Grenzschicht überwiegt

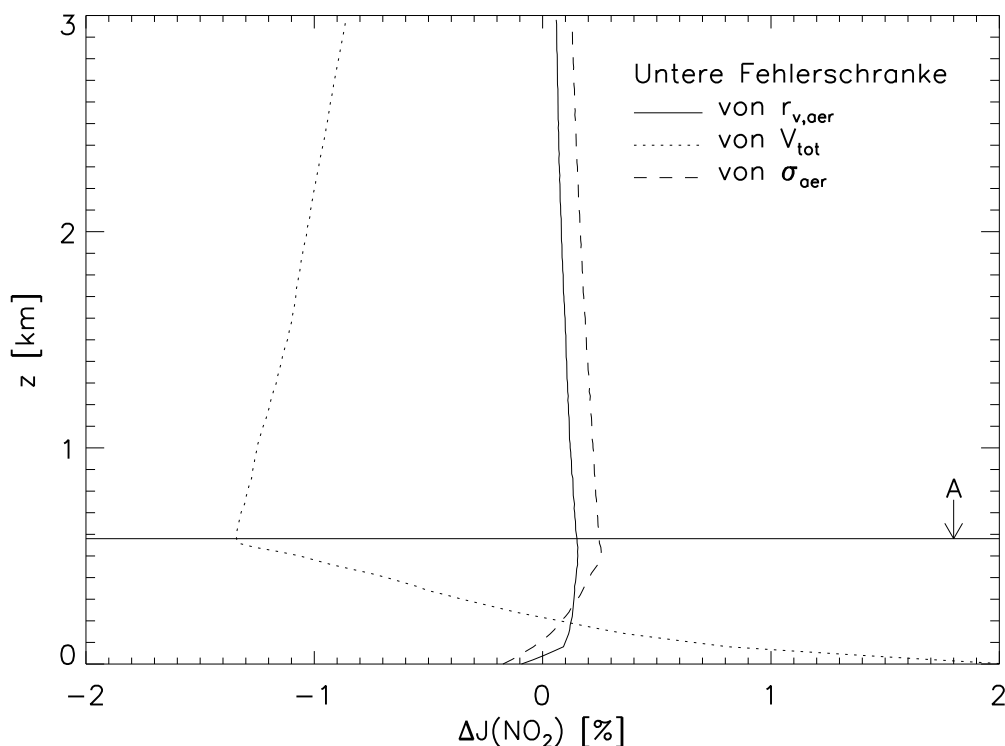


Abbildung 6.8: Prozentuale Abweichung $\Delta J(\text{NO}_2)$ auf Grund der Geräteungenauigkeiten von $J(\text{NO}_2)$ bei Verwendung der unteren Fehlerschranke von $r_{v,\text{aer}}$, V_{tot} und σ_{aer} zu $J(\text{NO}_2)$ bei Verwendung der mittleren Werte.

die im Vergleich zum nicht reduzierten Aerosolvolumen stärker ausgeprägte direkte Strahlung und führt zu einer Erhöhung von $J(\text{NO}_2)$.

Die Reduktion des mittleren Volumenradius (durchgezogene Linie) führt zu einer größeren Anzahl kleinerer Partikel. Diese Partikel sind effektivere Streukörper. Aus diesem Grund ist $J(\text{NO}_2)$ oberhalb der Grenzschicht leicht erhöht und innerhalb der Grenzschicht ebenso leicht vermindert. Dieselbe Erklärung ergibt sich für die Verminderung der Standardabweichung (gestrichelte Linie). Die beiden zuletzt beschriebenen Verringerungen führen zu Änderungen von $J(\text{NO}_2)$ um weniger als 0.2%. Durch Addition des Absolutwertes der einzelnen Abweichungen erhält man den maximal möglichen Fehler von $J(\text{NO}_2)$ auf Grund der Messungenauigkeiten bei der Bestimmung der Aerosoleigenschaften, was zu dem in Abb. 6.7 dargestellten Fehlerband um das simulierte $J(\text{NO}_2)$ führt. Für beide Flugabschnitte des 6.12.1996 ergaben sich maximale Abweichungen auf Grund der Messungenauigkeiten von etwa $\pm 2\%$ in 2 km Höhe und ungefähr $\pm 3\%$ in den bodennahen Schichten. Die geringe

Breite des Fehlerbandes in 200 bis 300 m Höhe liegt in der Änderung des Vorzeichens von $\Delta J(\text{NO}_2)$ begründet.

Im rechten Teil der Abb. 6.7 ist die prozentuale Abweichung $\Delta J(\text{NO}_2)$ des simulierten $J(\text{NO}_2)$ -Profils zum gemessenen dargestellt. Dazu wurden die Messdaten zunächst auf das vertikale Simulationsgitter gemittelt und anschließend das $\Delta J(\text{NO}_2)$ bestimmt. Das hellgrau-weiß gestreifte Band um den gemessenen Referenzwert beschreibt die Messungenauigkeit des Filtrerradiometers. Die Ungenauigkeiten bei der Messung der Aerosoleigenschaften sind durch die grau schattierte Fläche markiert.

Lediglich im Höhenbereich oberhalb der Grenzschicht zwischen 500 m und 1400 m ist die Abweichung des simulierten $J(\text{NO}_2)$ zum beobachteten $J(\text{NO}_2)$ um etwa 5% größer als die Geräteungenauigkeiten. Die Simulationsergebnisse unterschätzen die gemessenen $J(\text{NO}_2)$ und damit die Streueigenschaften der Aerosolpartikel. Berücksichtigt man jedoch zusätzlich die Messungenauigkeiten bei der Bestimmung der Aerosoleigenschaften so ist das simulierte $J(\text{NO}_2)$ lediglich in 500 m bis 600 m und in 900 m bis 1000 m um etwa 2% bis 3% zu gering. Ursache hierfür könnte ein höheres Absorptionsvermögen der Aerosolpartikel sein.

Abb. 6.9 (links) zeigt das simulierte (Rauten) und gemessene (durchgezogene Linie) $J(\text{NO}_2)$ -Profil für den absteigenden Flugabschnitt am 6.12.1996.

Der rechte Teil der Abb. 6.9 zeigt die prozentuale Abweichung $\Delta J(\text{NO}_2)$ der simulierten zu den gemessenen Werten für $J(\text{NO}_2)$, wobei das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband die Messunsicherheiten des $J(\text{NO}_2)$ -Filtrerradiometers und das graue Fehlerband die des Aerosolmessgerätes markieren.

In dieser Abbildung wird deutlich, dass oberhalb der Grenzschicht die simulierten $J(\text{NO}_2)$ -Werte die gemessenen Werte für $J(\text{NO}_2)$ unterschätzen und innerhalb der Grenzschicht diese überschätzen. $\Delta J(\text{NO}_2)$ ist jedoch nur mit wenigen Ausnahmen oberhalb von 2.5 km und unterhalb von 300 m größer als die Messungenauigkeiten. Die Unterschätzung oberhalb von 2.5 km Höhe von $J(\text{NO}_2)$ durch die Simulation könnte durch den geringeren Sonnenzenitwinkel zum Startzeitpunkt des Flugabschnittes im Vergleich zum verwendeten mittleren Sonnenzenitwinkel verursacht sein. Einen Hinweis darauf gibt auch die deutliche Zunahme von $J(\text{NO}_2)$ in diesem Höhenabschnitt, was im linken Teil der Abb. 6.9 deutlich erkennbar ist.

Die Überschätzung des simulierten $J(\text{NO}_2)$ in den untersten 300 m der Grenzschicht ist wiederum auf die chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel zurückzuführen. Die starke Abnahme von $J(\text{NO}_2)$ auf Grund des Aerosoleinflusses wird in der

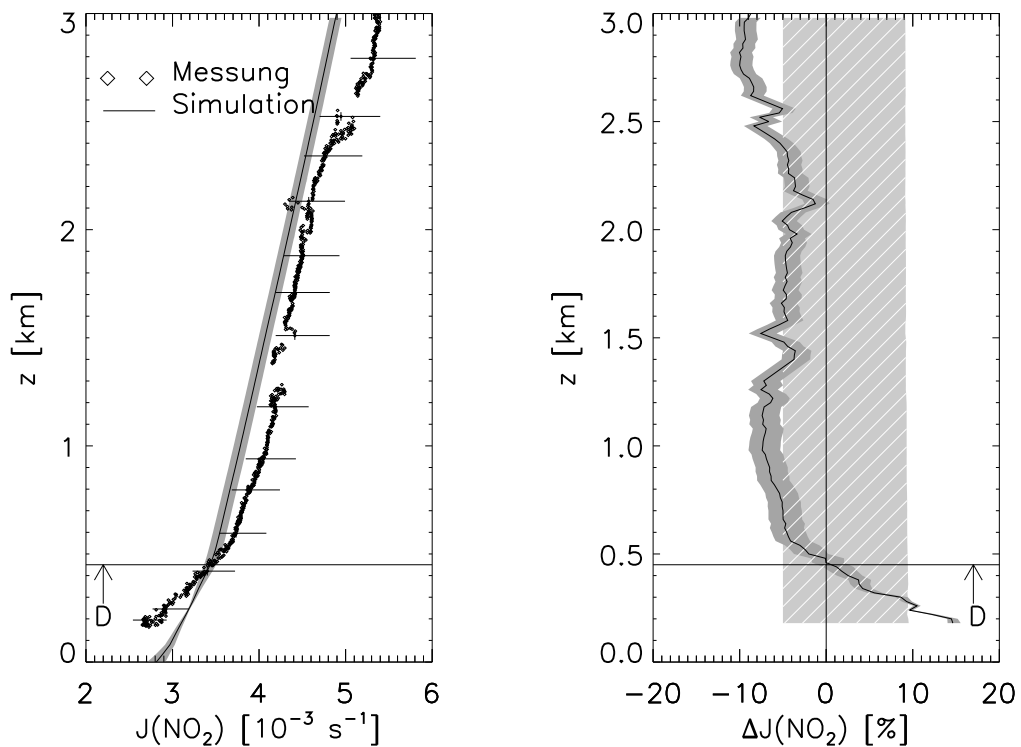


Abbildung 6.9: $J(\text{NO}_2)$ und $\Delta J(\text{NO}_2)$ für den absteigenden Flugabschnitt am 6.12.1996. Das graue Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit bei der Bestimmung der Aerosolgrößenverteilung, und das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers.

Simulation unterschätzt. Eine weitere Ursache für die Überschätzung des bodennahen $J(\text{NO}_2)$ in der Simulation ist durch die Horizontbeschränkung verursacht, welche die Messungen beeinflusst. Der Einfluss des Horizonts wurde in den Simulationen vernachlässigt.

6.3.2 Optisch dicke Wolke – 9. Dezember 1996

In diesem Abschnitt soll nun der Einfluss einer optisch dicken Wolke auf die Photodissoziationsfrequenz von NO_2 untersucht werden.

Der linke Teil der Abb. 6.10 zeigt die vertikale Inhomogenität des gemessenen Flüssigwassergehalts Q_l für den aufsteigenden Flugabschnitt (durchgezogene Linie) sowie den absteigenden Flugabschnitt (gepunktete Linie) am 9.12.1996. Die geometrische Ausdehnung der Wolke während des aufsteigenden Flugabschnittes ist schraffiert,

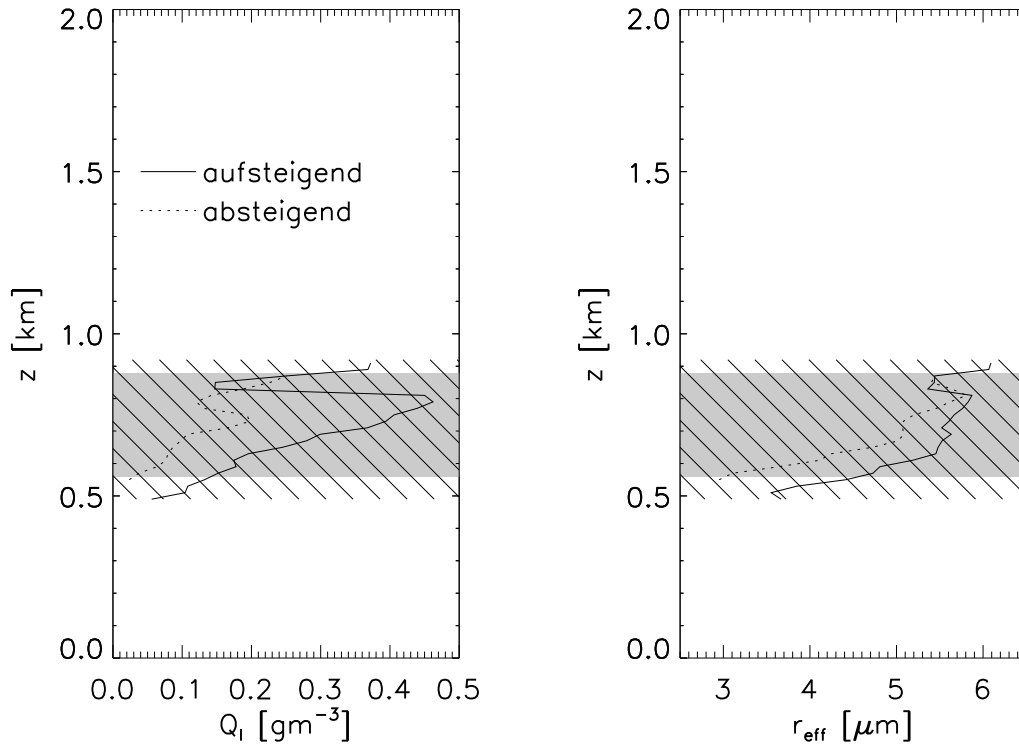


Abbildung 6.10: Gemessene Werte von Q_l (links) und r_{eff} (rechts) am 9.12.1996. Die schraffierte Fläche beschreibt die geometrische Ausdehnung der Wolke während des aufsteigenden Flugabschnitts und die schattierte Fläche die während des absteigenden Flugabschnitts.

die während des absteigenden Flugabschnittes ist schattiert. Das gemessene Vertikalprofil von Q_l entspricht in etwa einem adiabatischen Tropfenwachstum (*Wendisch und Keil, 1999*).

Die gemessenen effektiven Radien r_{eff} (durchgezogene Linie für den aufsteigenden und gepunktete Linie für den absteigenden Flugabschnitt) sind im rechten Teil der Abb. 6.10 dargestellt. Der effektive Radius r_{eff} wurde aus dem gemessenen mittleren Volumenradius $r_{\text{v,dro}}$ über die Beziehung der Momente einer Verteilung zueinander bestimmt (vgl. Gl. 2.28). Die Definition von $r_{\text{v,dro}}$ lautet:

$$r_{\text{v,dro}} = \frac{\int r v(r) dr}{\int v(r) dr}, \quad (6.7)$$

wobei

$$v(r) = \frac{4\pi}{3} r^3 n(r) \quad (6.8)$$

die Volumenverteilungsfunktion ist. Dadurch ergibt sich

$$r_{\text{v,dro}} = \frac{\int r^4 n(r) dr}{\int r^3 n(r) dr} = \frac{M_4}{M_3} = r_m \exp \left\{ \frac{7}{2} \ln^2 \sigma \right\}. \quad (6.9)$$

Die Definition von r_{eff} lautet:

$$r_{\text{eff}} = \frac{\int r^3 n(r) dr}{\int r^2 n(r) dr} = \frac{M_3}{M_2} = r_m \exp \left\{ \frac{5}{2} \ln^2 \sigma \right\}. \quad (6.10)$$

Durch Einsetzen der nach dem Modenradius r_m aufgelösten Gl. (6.9) in Gl. (6.10) ergibt sich für r_{eff} als Funktion von $r_{\text{v,dro}}$:

$$r_{\text{eff}} = r_{\text{v,dro}} \exp \left\{ -\ln^2 \sigma \right\}. \quad (6.11)$$

Im unteren Drittel der Wolke nimmt r_{eff} bei beiden Flugabschnitten stark zu. Im oberen Teil der Wolke sind die r_{eff} jedoch nahezu konstant.

Das lokale Minimum des Flüssigwassergehalts im aufsteigenden Flugabschnitt in der Höhe von etwa 800 bis 900 m wird von entsprechend geringeren effektiven Radien in dieser Höhe begleitet.

Abb. 6.11 (links) zeigt das simulierte (Rauten) und gemessene (durchgezogene Linie) $J(\text{NO}_2)$ -Profil für den aufsteigenden Flugabschnitt am 9.12.1996. Das Fehlerband um die simulierten $J(\text{NO}_2)$ -Werte ist auf die Ungenauigkeiten der Messgeräte zur Bestimmung der Wolkentropfeneigenschaften zurückzuführen. Die Messunsicherheit bei der Bestimmung der einzelnen Parameter hat folgende untere und obere Fehlerschranken (*Früh et al.*, 2000a; *Wendisch et al.*, 1998):

- Für den mittlerer Volumenradius $r_{\text{v,dro}}$: -8% bis +8%,
- für den Flüssigwassergehalt Q_l : -27% bis +42% und
- für die Standardabweichung σ_{dro} : -7% bis +7%.

Der lineare Zusammenhang von r_{eff} und $r_{\text{v,dro}}$ (Gl. (6.11)) erlaubt die Fehlerschranken von $r_{\text{v,dro}}$ als Fehlerschranken für r_{eff} zu übernehmen. Analog zu den wolkenlosen Simulationen vom 6.12.1996 wurden auch hier zur Bestimmung der Abweichungen, welche die Messungenauigkeit der einzelnen Parameter hervorrufen, mehrere Simulationen durchgeführt, wobei je ein Parameter um den Wert der Fehlerschranke verringert bzw. erhöht wurde, die übrigen Parameter jedoch ihren Wert beibehielten.

Abb. 6.12 zeigt die prozentualen Abweichungen des $J(\text{NO}_2)$ -Profils bei Verwendung der jeweils unteren Fehlerschranke des effektiven Radius r_{eff} (durchgezogene Linie), des Flüssigwassergehalts Q_l (gepunktete Linie) und der Standardabweichung σ_{dro}

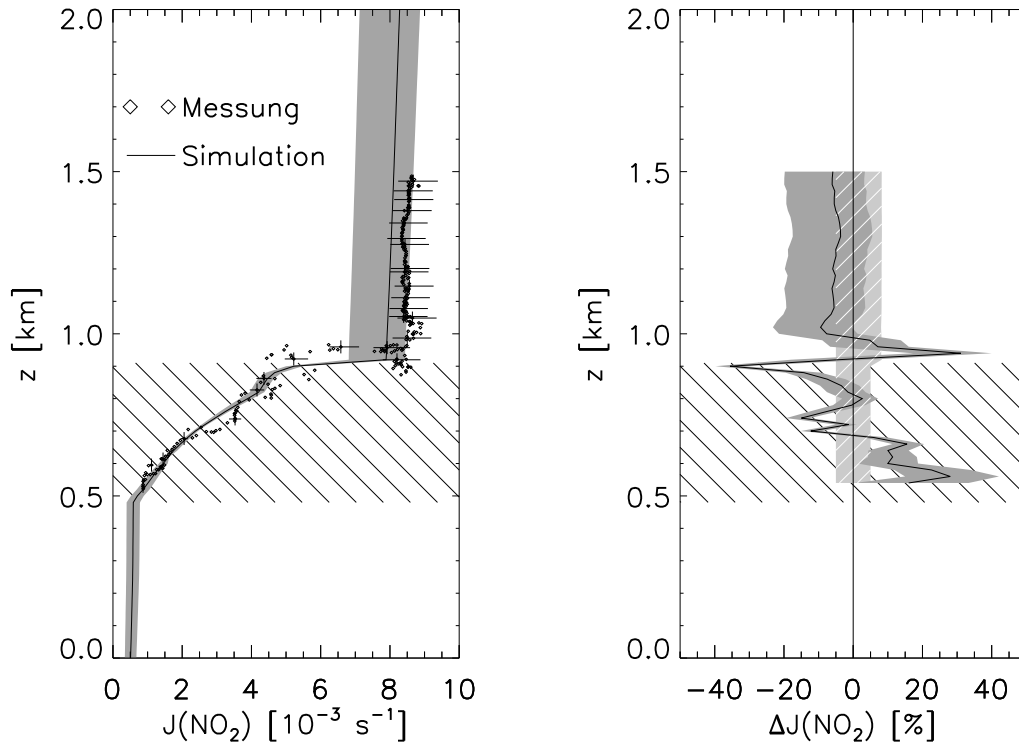


Abbildung 6.11: $J(\text{NO}_2)$ und $\Delta J(\text{NO}_2)$ für den aufsteigenden Flugabschnitt am 9.12.1996. Das graue Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit bei der Bestimmung der Wolkentropfenverteilung, und das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers. Die schraffierte Fläche beschreibt die geometrische Ausdehnung der Wolke.

(gestrichelte Linie) im Vergleich zum $J(\text{NO}_2)$ -Profil bei Verwendung der mittleren Werte für die Verteilungsparameter der Wolkentropfen. Es wird deutlich, dass das $J(\text{NO}_2)$ -Profil stärker durch die Veränderung der Verteilungsparameter der Wolkentropfen beeinflusst wird als durch die Veränderung der Verteilungsparameter des Aerosols.

Für die Interpretation der Resultate sollen die Abweichungen mittels einer Approximation für die optische Dicke von Wolken τ_{wol} von *Slingo und Schrecker* (1982) diskutiert werden:

$$\tau_{\text{wol}} \simeq \frac{3 Q_l \Delta z}{2 r_{\text{eff}}}. \quad (6.12)$$

Dabei muss Q_l in gm^{-3} , Δz in m und r_{eff} in μm angegeben werden. Die Reflektivität ist proportional zu τ_{wol} und umgekehrt proportional zur Transmission.

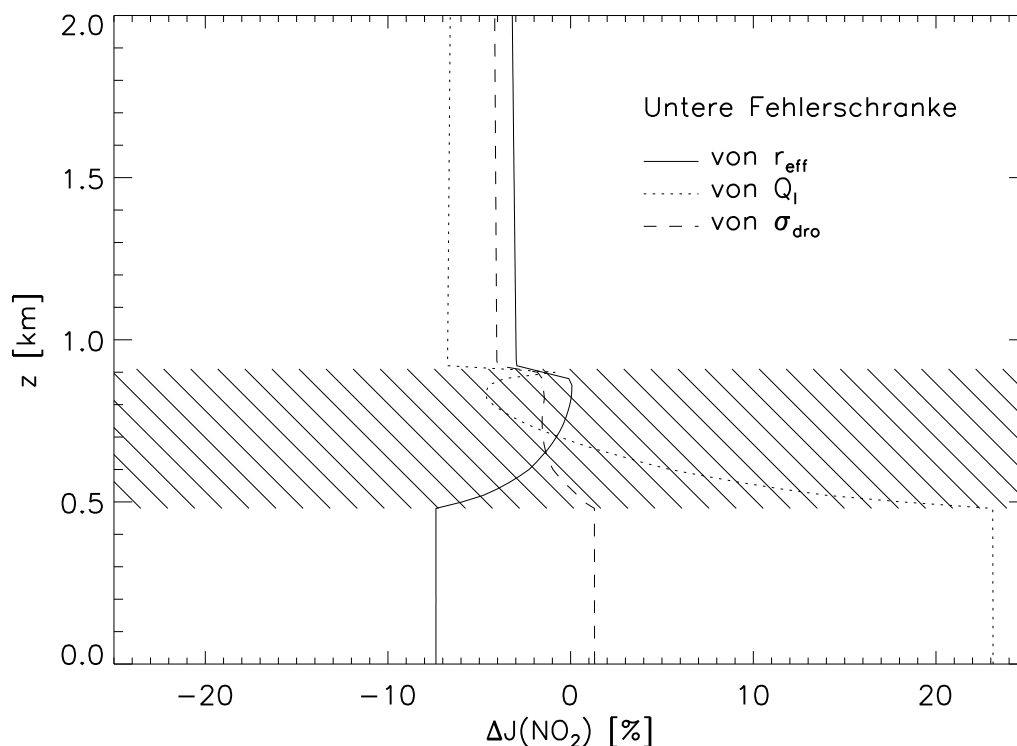


Abbildung 6.12: Prozentuale Abweichung $\Delta J(\text{NO}_2)$ auf Grund der Geräteungenauigkeiten von $J(\text{NO}_2)$ bei Verwendung der unteren Fehlerschranke von r_{eff} , Q_l und σ_{dro} zu $J(\text{NO}_2)$ bei Verwendung der mittleren Werte. Die schraffierte Fläche beschreibt die geometrische Ausdehnung der Wolke.

Wird die Simulation mit der unteren Fehlerschranke für r_{eff} (-8%) ausgeführt, so wird die Tropfenzahlkonzentration auf Grund des konstanten Q_l erhöht. Nach Gl. (6.12) erhöht sich auch τ_{wol} , was eine niedrigere Transmission zur Folge hat.

Wird Q_l um den Wert der unteren Fehlerschranke erniedrigt (-27%), so wird τ_{wol} wegen des konstanten r_{eff} reduziert. Dies führt zu einer niedrigeren Reflektivität und auch zu niedrigerem $J(\text{NO}_2)$ oberhalb der Wolke und höherem $J(\text{NO}_2)$ unterhalb der Wolke.

Die vertikale Inhomogenität von Q_l innerhalb der Wolke (vgl. Abb. 6.10 (links)) führt zu einem weit komplexeren $J(\text{NO}_2)$ -Profil als im Fall einer vertikal homogenen Q_l Verteilung. Diese Inhomogenität führt zu einem relativen Maximum von $\Delta J(\text{NO}_2)$ am Wolkenoberrand.

Die Variation der Standardabweichung σ_{dro} hat nur sehr geringe Auswirkungen auf $J(\text{NO}_2)$.

Die Summe der Absolutbeträge der Abweichungen führt wiederum zu einem Fehlerband um das simulierte $J(\text{NO}_2)$ -Profil verursacht durch die Messungenauigkeiten bei der Bestimmung der Größenverteilung der Wolkentropfen. Die Bestimmung der Breite des Fehlerbandes ist analog zu der Bestimmung in wolkenfreier Atmosphäre (vgl. Abschnitt 6.3.1). Für den aufsteigenden Flugabschnitt am 9.12.1996 belaufen sich die resultierenden Abweichungen in 2 km Höhe auf etwa -14% bis +10% und -32% bis +33% in den bodennahen Schichten.

Der rechte Teil der Abb. 6.11 zeigt die prozentuale Abweichung $\Delta J(\text{NO}_2)$ der simulierten zu den gemessenen $J(\text{NO}_2)$ -Werten, wobei das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband die Messunsicherheiten des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers und das graue Fehlerband die der Messgeräte zur Bestimmung der Wolkentropfenverteilung beschreiben.

In dieser Abbildung wird deutlich, dass $\Delta J(\text{NO}_2)$ oberhalb der Wolke innerhalb der Messungenauigkeit liegt.

Innerhalb der Wolke sind die Abweichungen jedoch größer. Die Abnahme des simulierten $J(\text{NO}_2)$ innerhalb der Wolke stimmt jedoch sehr gut mit den Messungen überein. Besonders hoch sind die Abweichungen am Wolkenoberrand. Im Gegensatz zu den Annahmen des 1-dimensionalen Modells ist der Wolkenoberrand in der Atmosphäre nicht horizontal homogen. Befinden sich Ausläufer der Wolke, welche in größere Höhen reichen, in der näheren Umgebung der Messung, so wirken sich diese auf das $J(\text{NO}_2)$ -Profil aus. Solche Inhomogenitäten können von dem 1-dimensionalen Strahlungstransportmodell nicht berücksichtigt werden. Sie können jedoch die Ursache für größere Abweichungen innerhalb und besonders am Oberrand der Wolke sein.

Der linke Teil der Abb. 6.13 zeigt das simulierte und gemessene $J(\text{NO}_2)$ für den absteigenden Flugabschnitt am 9.12.1996. Die Rauten beziehen sich auf die Messungen und die durchgezogene Linie auf die Simulationsergebnisse. Die Messungenauigkeit bei der Bestimmung der Größenverteilung der Wolkentropfen ist wiederum durch das graue Fehlerband um die Simulationsergebnisse markiert. In 2 km Höhe beträgt der Einfluss auf das simulierte $J(\text{NO}_2)$ in Folge dieser Messungenauigkeit -11% bis +7% und in den bodennahen Schichten -23% bis +25%.

Der rechte Teil der Abb. 6.13 beschreibt wiederum $\Delta J(\text{NO}_2)$ der simulierten zu den gemessenen $J(\text{NO}_2)$ -Werten. Das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers.

Oberhalb der Wolke ist die Übereinstimmung zwischen Simulationsergebnissen und

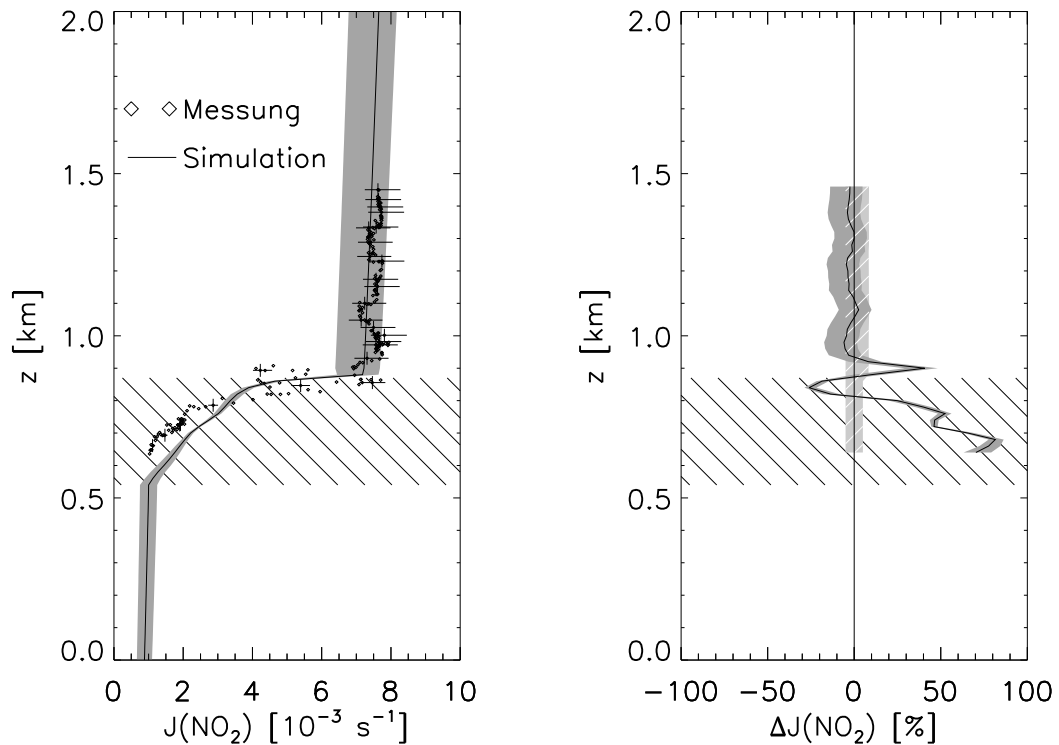


Abbildung 6.13: $J(\text{NO}_2)$ und $\Delta J(\text{NO}_2)$ für den absteigenden Flugabschnitt am 9.12.1996. Das graue Fehlerband beschreibt die Messgenauigkeit bei der Bestimmung der Wolkentropfengrößenverteilung, und das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband beschreibt die Messgenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers. Die schraffierte Fläche beschreibt die geometrische Ausdehnung der Wolke.

Messungen sehr gut. Die Abweichungen $\Delta J(\text{NO}_2)$ sind geringer als die Messgenauigkeiten. Innerhalb der Wolke ist $\Delta J(\text{NO}_2)$ jedoch deutlich größer. Die Reduktion des $J(\text{NO}_2)$ innerhalb der Wolke wird aber auch hier sehr gut von der Simulation wiedergegeben. Die großen Abweichungen innerhalb der Wolke ergeben sich dadurch, dass die beobachteten $J(\text{NO}_2)$ bereits in größerer Höhe stärker reduziert werden als das simulierte $J(\text{NO}_2)$.

6.3.3 Optisch dünne Wolke – 11. Dezember 1996

Abb. 6.14 zeigt einen weiteren Vergleich zwischen gemessenen und simulierten Photodissoziationsfrequenzen von NO_2 für eine optisch dünne Wolke des aufsteigenden Flugabschnitts am 11.12.1996. Die Rauten beziehen sich auf die Messungen und die

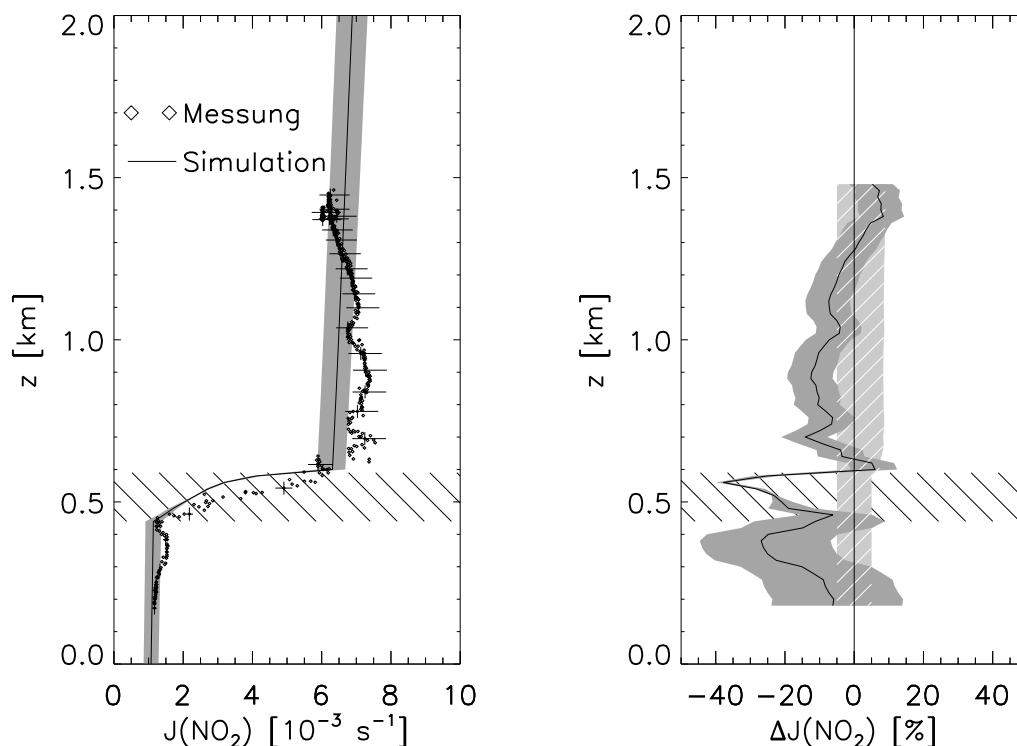


Abbildung 6.14: $J(\text{NO}_2)$ und $\Delta J(\text{NO}_2)$ für den aufsteigenden Flugabschnitt am 11.12.1996. Das graue Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit bei der Bestimmung der Wolkentropfengrößenverteilung, und das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers. Die schraffierte Fläche beschreibt die geometrische Ausdehnung der Wolke.

durchgezogene Linie auf die Simulationsergebnisse.

Für den aufsteigenden Flugabschnitt beträgt die Breite des Fehlerbandes in 2 km Höhe -7% bis +6% und in den bodennahen Schichten -18% bis +20%. Das Fehlerband ist für die optisch dünnere Wolke schmäler als bei den optisch dickeren Wolken vom 9.12.1996, da die absoluten Veränderungen durch die Verwendung der Fehlergrenzen bei der optisch dickeren Wolke größer sind.

Die gemessenen und simulierten $J(\text{NO}_2)$ -Werte oberhalb der Wolke stimmen sehr gut überein. Innerhalb der Wolke sind die Abweichung wieder größer, wobei die Reduktion des $J(\text{NO}_2)$ innerhalb der Wolke mit zunehmender Eindringtiefe der Strahlung sehr gut vom Modell beschrieben wird. Dies wird auch dadurch deutlich, dass die Abweichung unterhalb der Wolke nahezu innerhalb der Messungenauigkeit liegt.

Abb. 6.15 beschreibt die gemessenen und simulierten $J(\text{NO}_2)$ -Profile für die optisch

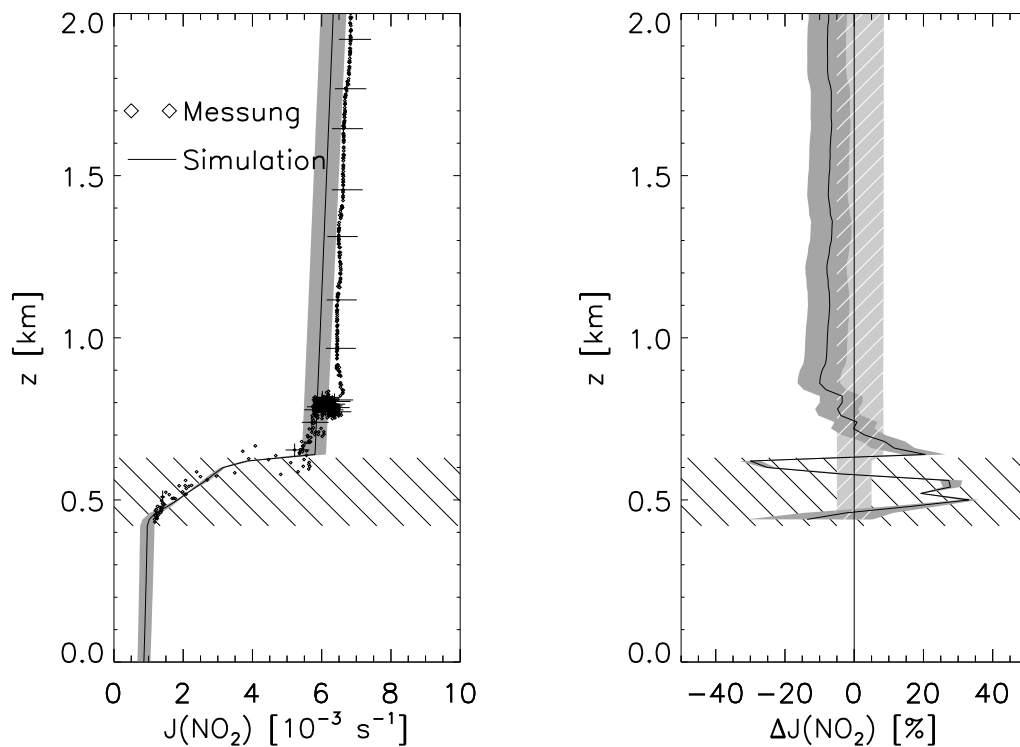


Abbildung 6.15: $J(\text{NO}_2)$ und $\Delta J(\text{NO}_2)$ für den absteigenden Flugabschnitt am 11.12.1996. Das graue Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit bei der Bestimmung der Wolkentropfengrößenverteilung, und das hellgrau-weiß gestreifte Fehlerband beschreibt die Messungenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers. Die schraffierte Fläche beschreibt die geometrische Ausdehnung der Wolke.

dünne Wolke beim absteigenden Flugabschnitt am 11.12.1996. Die Rauten beziehen sich auf die Messungen und die durchgezogene Linie auf die Simulationsergebnisse. Für den absteigenden Flugabschnitt beträgt die Breite des Fehlerbandes in 2 km Höhe -6% bis +5% und in den bodennahen Schichten -20% bis +22%. Auch stimmen die gemessenen und simulierten $J(\text{NO}_2)$ -Werte oberhalb der Wolke sehr gut überein. Innerhalb der Wolke sind die Abweichung wieder größer, wobei die Reduktion des $J(\text{NO}_2)$ innerhalb der Wolke mit zunehmender Eindringtiefe der Strahlung sehr gut beschrieben wird.

6.3.4 Zusammenfassende Bemerkungen

In wolkenfreier Atmosphäre liegen die Abweichungen $\Delta J(\text{NO}_2)$ der simulierten zu den gemessenen $J(\text{NO}_2)$ im Wesentlichen innerhalb der Messgenauigkeit des $J(\text{NO}_2)$ -Filtterradiometers und der Ungenauigkeit der Messgeräte, welche zur Bestimmung der Aerosoleigenschaften eingesetzt werden.

Zu Unsicherheiten in der Simulation führt zum einen die Annahme der chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel und damit dem Brechungsindex der Aerosolpartikel. Zum anderen kann aber auch die zeitliche Dauer eines Flugabschnitts Ursache für Abweichungen sein. Je nach Dauer des Experiments und geographischer Position kann der Sonnenzenitwinkel sehr stark variieren. Besonders bei niedrigem Sonnenstand führen diese Variationen zu recht großen Veränderungen der gemessenen $J(\text{NO}_2)$ -Werte. Da während der Simulation ein mittlerer Sonnenzenitwinkel für die Flugzeit und geographische Position verwendet wird, können diese Veränderung nicht von den Modellrechnungen erfasst werden.

In bewölkter Atmosphäre liegen die Abweichungen $\Delta J(\text{NO}_2)$ der simulierten zu den gemessenen $J(\text{NO}_2)$ -Werten oberhalb und unterhalb der Wolke im Wesentlichen innerhalb der Messgenauigkeit der Messgeräte. Auch die Reduktion des $J(\text{NO}_2)$ mit zunehmender Eindringtiefe der Strahlung in die Wolke wird von den simulierten $J(\text{NO}_2)$ sehr gut wiedergegeben. Die größeren Abweichungen am Wolkenoberrand sind durch die inhomogene obere Grenze der Wolke in der Atmosphäre im Vergleich zur diskretisierten Wolke in der Simulation verursacht. Auch horizontale Inhomogenitäten innerhalb der Wolke führen zu größerem $\Delta J(\text{NO}_2)$. Wegen der hohen zeitlichen und räumlichen Variabilität des Flüssigwassergehalts in Wolken ist der Flüssigwassergehalt während des Flugzeugexperiments nicht konstant. Die Veränderung des Flüssigwassergehalts der Wolke hat einen großen Einfluss auf $J(\text{NO}_2)$.

Kapitel 7

Die BERLIOZ-Messkampagne

Im folgenden Kapitel wurde ein Vergleich der Simulationsergebnisse mit spektralen Messungen des aktinischen Flusses durchgeführt.

Im Rahmen der BERLIOZ-Messkampagne, welche im Sommer 1998 stattfand, wurde auf dem Dach des Charité-Gebäudes in Berlin (52.67°N, 13.37°O) der aktinische Fluss mit einem 4π -Spektralradiometer (SRM) von *Eckstein* (2000a) gemessen. Für die vier Intensivmesstage 20.7.1998, 21.7.1998, 6.8.1998 und 8.8.1998 wurden jeweils zwölf Simulationen mit dem δ -Vier-Strom-Verfahren zur Beschreibung des jeweiligen Tagesganges des aktinischen Flusses sowie der beiden Photodissoziationsfrequenzen $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$ durchgeführt. Der Tagesgang dieser Strahlungsgrößen wurde dadurch simuliert, dass der für jede volle Stunde zwischen 6 UTC und 17 UTC berechnete Sonnenzenitwinkel in die Simulation einging.

Um den Aerosoleffekt auf das Strahlungsfeld abzuschätzen, wurden alle Simulationen unter Vernachlässigung des Aerosols wiederholt. Die daraus resultierenden Profile des aktinischen Flusses, von $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$ wurden auf der BERLIOZ-Datenbank (<http://zdb-imk.physik.uni-karlsruhe.de>) abgelegt. Zusätzlich wurden Simulationen mit einer sehr hohen Aerosolbelastung durchgeführt, um zu einer oberen Abschätzung des Aerosoleinflusses zu gelangen.

In Abschnitt 7.2 werden die simulierten und gemessenen spektralen aktinischen Flüsse miteinander verglichen. Anhand dreier Beispiele am Nachmittag des 8.8.1998 um 13 UTC, 15 UTC und 16 UTC werden die Übereinstimmungen der beiden Spektren gezeigt. In *Junkermann et al.* (2000) wird das Ergebnis eines weiteren Vergleichs simulierter und gemessener aktinischer Flüsse vom 20.7.1998 vorgestellt. Weitere Vergleiche sind in *Eckstein et al.* (2000b) zusammengefasst.

Aus den gemessenen aktinischen Flüssen konnten verschiedene Photodissoziations-

frequenzen abgeleitet werden (*Junkermann et al.*, 2000). In Abschnitt 7.3 werden die Tagesgänge der aus den Messungen abgeleiteten Photodissoziationsfrequenzen von Stickstoffdioxid und Ozon, welche kurz mit $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_M(\text{O}(^1\text{D}))$ bezeichnet werden, mit den simulierten $J_S(\text{NO}_2)$ und $J_S(\text{O}(^1\text{D}))$ an den Intensivmesstagen verglichen.

Zunächst werden in Abschnitt 7.1 die Mess- und Literaturdaten beschrieben, welche als Eingabe für das Strahlungstransportmodell verwendet wurden.

7.1 Die Modelleingabe

Im folgenden Abschnitt wird die Ableitung der Modelleingabe aus den Messungen beschrieben. Dieser Abschnitt ist unterteilt in die Beschreibung der Approximation zur Bestimmung der Bodenalbedo aus spektralen Messungen des aktinischen Flusses, der Bestimmung der Vertikalprofile des Luftdrucks, der Temperatur und der Ozonkonzentration aus Sondenaufstiegen und der Beschreibung der Modelleingabe für die Aerosol- und Wolkeneigenschaften.

Bodenalbedo

Die spektrale Bodenalbedo A_G wurde aus Messungen abgeleitet und ist in Abb. 7.1 dargestellt. Zur Bestimmung von A_G wurde ein schwarzer Karton unterhalb des Messkopfes montiert. Näherungsweise ergibt sich dadurch für die Bodenalbedo $A_G = 0$. Durch einen Vergleich mit Messungen ohne schwarzen Karton konnte die Bodenalbedo approximiert werden. Eine detaillierte Beschreibung des Experiments und die dazugehörige Fehlerabschätzung sind in *Eckstein* (2000a) enthalten.

A_G ist über das Verhältnis zwischen der nach oben gerichteten Strahlungsflussdichte E^\uparrow und der nach unten gerichteten Strahlungsflussdichte E^\downarrow definiert:

$$A_G = \frac{E^\uparrow}{E^\downarrow}. \quad (7.1)$$

Unter der Annahme, dass gilt:

$$\frac{E^\uparrow}{E^\downarrow} \approx \frac{F_{\text{act}}^\uparrow}{F_{\text{act}}^\downarrow}, \quad (7.2)$$

folgt:

$$A_G F_{\text{act}}^\downarrow = F_{\text{act}}^\uparrow. \quad (7.3)$$

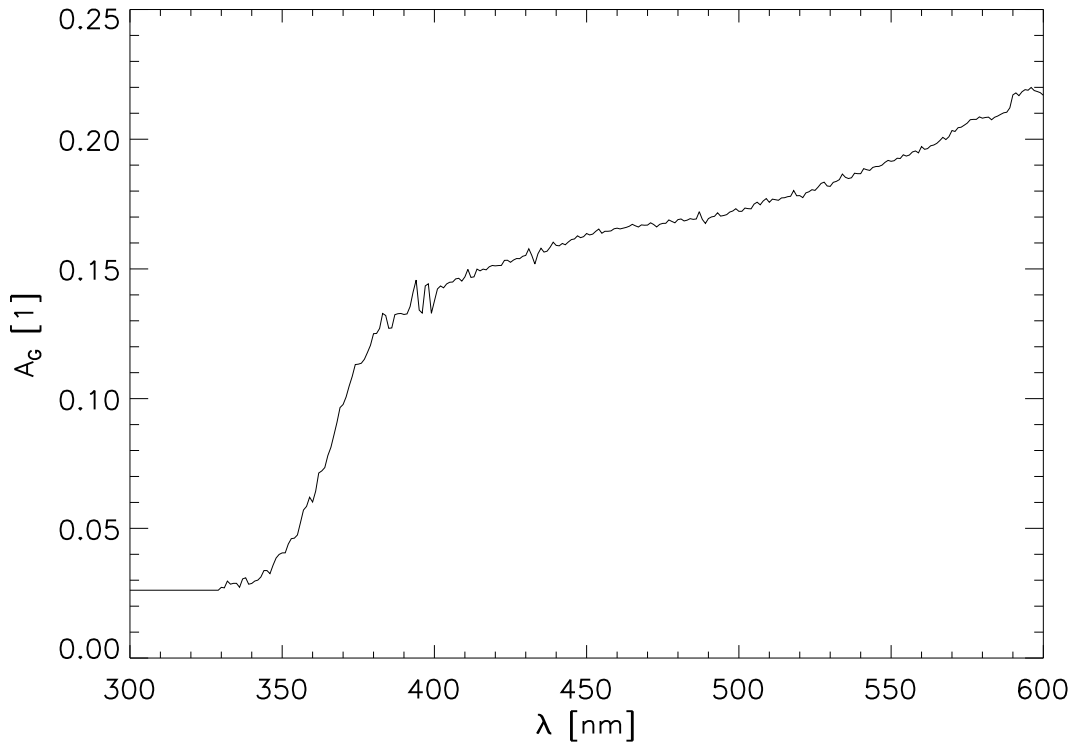


Abbildung 7.1: Aus den Messungen abgeleitete spektrale Bodenalbedo A_G in Abhängigkeit von λ .

Die Annahme in Gl. (7.2) ist für ein isotropes Strahlungsfeld exakt, da die Strahldichte in diesem Fall unabhängig vom Zenitwinkel $\mu = \cos \vartheta$ ist (vgl. dazu die Definitionen in Gl. (3.5) und Gl. (4.1)). Mit Gl. (7.3) gilt:

$$F_{\text{act}} = F_{\text{act}}^{\downarrow} + F_{\text{act}}^{\uparrow} = F_{\text{act}}^{\downarrow} + A_G F_{\text{act}}^{\downarrow}. \quad (7.4)$$

Bei der Messung des aktinischen Flusses mit schwarzem Karton $F_{\text{act},2}$ ist $A_G = 0$. Mit Gl. (7.4) folgt:

$$F_{\text{act},2} = F_{\text{act},2}^{\downarrow}. \quad (7.5)$$

Die Messung ohne schwarzen Karton $F_{\text{act},1}$ enthält die Flüsse in beide Richtungen, d.h. $F_{\text{act},1} = F_{\text{act},1}^{\downarrow} + A_G F_{\text{act},1}^{\downarrow}$. Unter der Annahme, dass der nach unten gerichtete aktinische Fluss $F_{\text{act}}^{\downarrow}$ während des Messzeitraumes unverändert blieb, d.h. $F_{\text{act}}^{\downarrow} = F_{\text{act},1}^{\downarrow} = F_{\text{act},2}^{\downarrow}$ lässt sich aus der Differenz der beiden aktinischen Flüsse die Bodenalbedo A_G bestimmen:

$$F_{\text{act},1} - F_{\text{act},2} = F_{\text{act}}^{\downarrow} + A_G F_{\text{act}}^{\downarrow} - F_{\text{act}}^{\downarrow} = A_G F_{\text{act}}^{\downarrow}. \quad (7.6)$$

Aus Gl. (7.6) und Gl. (7.5) folgt damit:

$$A_G = \frac{F_{\text{act},1} - F_{\text{act},2}}{F_{\text{act},2}}. \quad (7.7)$$

Diese Approximation für die Bodenalbedo ging in die folgenden Simulationen ein.

Meteorologische Parameter

Die für die Simulation notwendigen meteorologischen Parameter, wie Lufttemperatur, Luftdruck und relative Feuchte wurden Sondenaufstiegen aus Lindenberg (52.12°N, 14.07°O) entnommen, welche während der BERLIOZ-Messkampagne täglich jeweils um 6 UTC, 12 UTC und 18 UTC stattfanden.

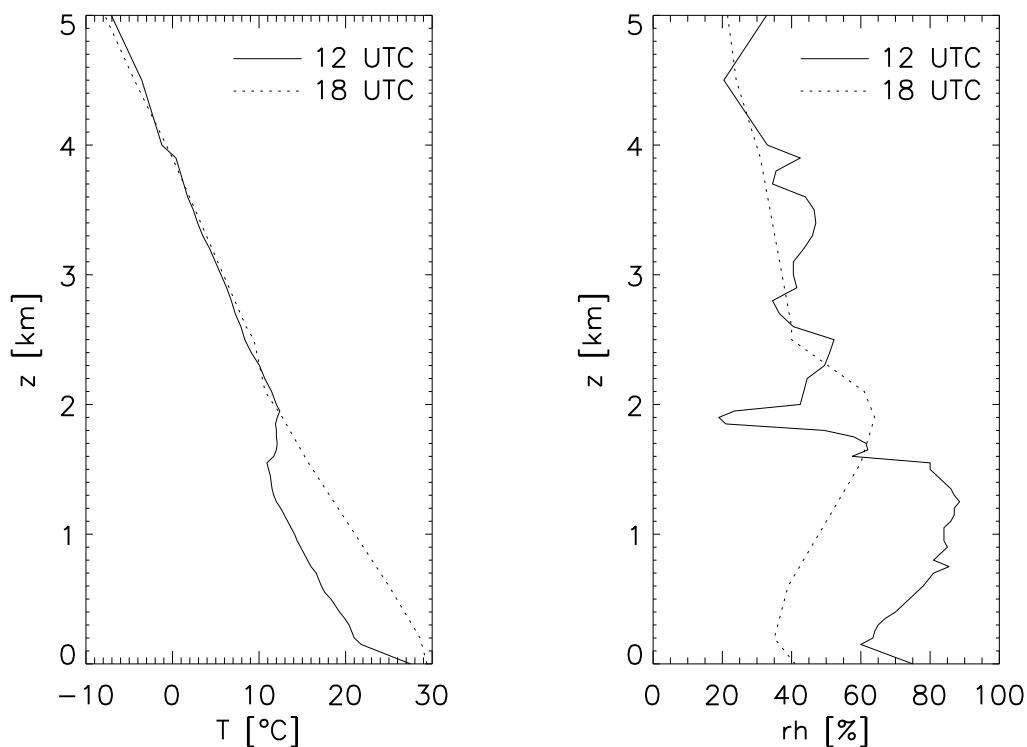


Abbildung 7.2: Vertikalprofil der Temperatur T (links) und der relativen Feuchte rh (rechts) vom 8.8.1998 12 UTC und 18 UTC.

Der linke Teil der Abb. 7.2 enthält die Vertikalprofile der Temperatur vom 8.8.1998 um 12 UTC (durchgezogene Linie) und um 18 UTC (gepunktete Linie), welche bei den Sondenaufstiegen gemessen wurden. Die beiden Profile unterscheiden sich hauptsächlich in den unteren 2 km der Atmosphäre. Das Temperaturprofil von 12 UTC

weist eine leichte Inversion in 1.5 km bis 2 km Höhe auf. Diese Inversion definiert die Höhe der planetaren Grenzschicht. Um 18 UTC ist diese Inversion verschwunden. Der rechte Teil der Abb. 7.2 zeigt für dieselben Sondenaufstiege die beiden Vertikalprofile der relativen Feuchte rh . Der Unterschied dieser beiden Profile ist signifikant. Um 12 UTC ist die relative Feuchte rh innerhalb der Grenzschicht hoch, nimmt aber innerhalb der Höhe der Inversionsschicht von 1.5 km bis 2 km deutlich ab. Das Minimum von rh wird in einer Höhe von 1.9 km erreicht. Um 18 UTC nimmt rh in den untersten 200 m der Grenzschicht ab. Oberhalb davon bis in eine Höhe von 2 km nimmt rh wieder zu und erreicht seinen maximalen Wert in 2 km Höhe. Die relative Feuchte um 18 UTC ist unterhalb von 1.6 km Höhe geringer als um 12 UTC. Der maximale Wert von rh um 18 UTC wird in einer Höhe erreicht, in der rh um 12 UTC ein Minimum hat.

Zur Simulation des Tagesganges des aktinischen Flusses, von $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$ wurden die Vertikalprofile der meteorologischen Parameter aus den Aufstiegen auf die vollen Stunden zwischen 6 UTC und 17 UTC interpoliert. Oberhalb der Messhöhe von etwa 30 km wurden zur Beschreibung des mittleren Zustandes der Atmosphäre die Werte für Sommer in mittleren Breiten nach *McClatchey et al.* (1971) verwendet.

Ozonkonzentration

Zur Bestimmung der troposphärischen Ozonkonzentration standen Vertikalprofile zweier LIDAR-Geräte (**L**ight **D**etection **a**nd **R**anging) in Lindenberg und auf dem Dach der Charité zur Verfügung. Die Ozon-LIDARs lieferten die vertikal aufgelöste Ozonkonzentration bis in eine Messhöhe von etwa 3 km. Das Vertikalprofil der Ozonkonzentration oberhalb der vom Ozon-LIDAR erfassten Höhe konnte den Sondenaufstiegen in Lindenberg bis in eine Höhe von 35 km entnommen werden. Oberhalb davon wurde wiederum das Standardprofil für Sommer in mittleren Breiten (*McClatchey et al.*, 1971) verwendet.

Da zusätzlich auch ein Tagesmittelwert für die Ozonsäule in Lindenberg gemessen wurde, wurde die aus *McClatchey et al.* (1971) abgeleitete Ozonkonzentration im oberen Teil der Atmosphäre anschließend so skaliert, dass über das gesamte Profil die gemessene Ozonsäule resultierte (vgl. Abschnitt 4.4). Tab. 7.1 enthält den gemessenen Tagesmittelwert der Ozonsäule für die vier Intensivmesstage.

Aus dem resultierenden Vertikalprofil der Ozonkonzentration wird die Anzahlkon-

| Parameter | Uhrzeit | 20.7.98 | 21.7.98 | 6.8.98 | 8.8.98 |
|-----------------------------|-------------|---------|---------|--------|--------|
| Ozonsäule, DU | Tagesmittel | 322 | 307 | 292 | 301 |
| Sichtweite, km | 6 UTC | 35 | 15 | 35 | 33 |
| | 9 UTC | 50 | 23 | 60 | 40 |
| | 12 UTC | 45 | 22 | 45 | 37 |
| | 15 UTC | 40 | 25 | 45 | 33 |
| | 18 UTC | 40 | 28 | 40 | 35 |
| Sonnenscheindauer, h | 6 - 9 UTC | 3.0 | 2.2 | 2.0 | 1.4 |
| | 9 - 12 UTC | 3.0 | 2.4 | 2.4 | 2.6 |
| | 12 - 15 UTC | 3.0 | 2.9 | 2.4 | 3.0 |
| | 15 - 18 UTC | 2.5 | 1.6 | 2.5 | 2.9 |
| Mittlerer Bedeckungsgrad, % | 6 - 9 UTC | 0 | 27 | 33 | 53 |
| | 9 - 12 UTC | 0 | 20 | 20 | 13 |
| | 12 - 15 UTC | 0 | 3 | 20 | 0 |
| | 15 - 18 UTC | 17 | 47 | 17 | 3 |

Tabelle 7.1: In Lindenberg gemessene Ozonsäule und aus der Berliner Wetterkarte entnommene Sichtweite, Sonnenscheindauer und daraus abgeleiteter mittlerer Bedeckungsgrad an den Intensivmesstagen.

zentration an Ozonmolekülen berechnet, welche für die Bestimmung der Ozonabsorption in der Atmosphäre in Gl. (2.8) benötigt wird.

Aerosol

Da während der BERLIOZ-Messkampagne keine Messungen bezüglich des Aerosolgehaltes der Atmosphäre durchgeführt werden konnten, musste auf Literaturwerte zurückgegriffen werden.

Abb. 7.3 enthält verschiedene Vertikalprofile der Aerosolanzahlkonzentration, welche die hohe Variabilität des Aerosols deutlich machen und damit auf die Problematik bei der Verwendung von Literaturdaten hinweisen.

Die mit Rauten gekennzeichnete, gepunktete Linie beschreibt das gemessene Vertikalprofil der Aerosolanzahlkonzentration bei einem Messflug vom 6.8.1998 in Lindenberg (*Wendisch*, pers. Mitteilung, 1999). Die mit Dreiecken gekennzeichnete, gestrichelte Linie beschreibt das gemessene Vertikalprofil bei einem Messflug vom 9.8.1998 ebenfalls in Lindenberg (*Wendisch*, pers. Mitteilung, 1999). Der aus den

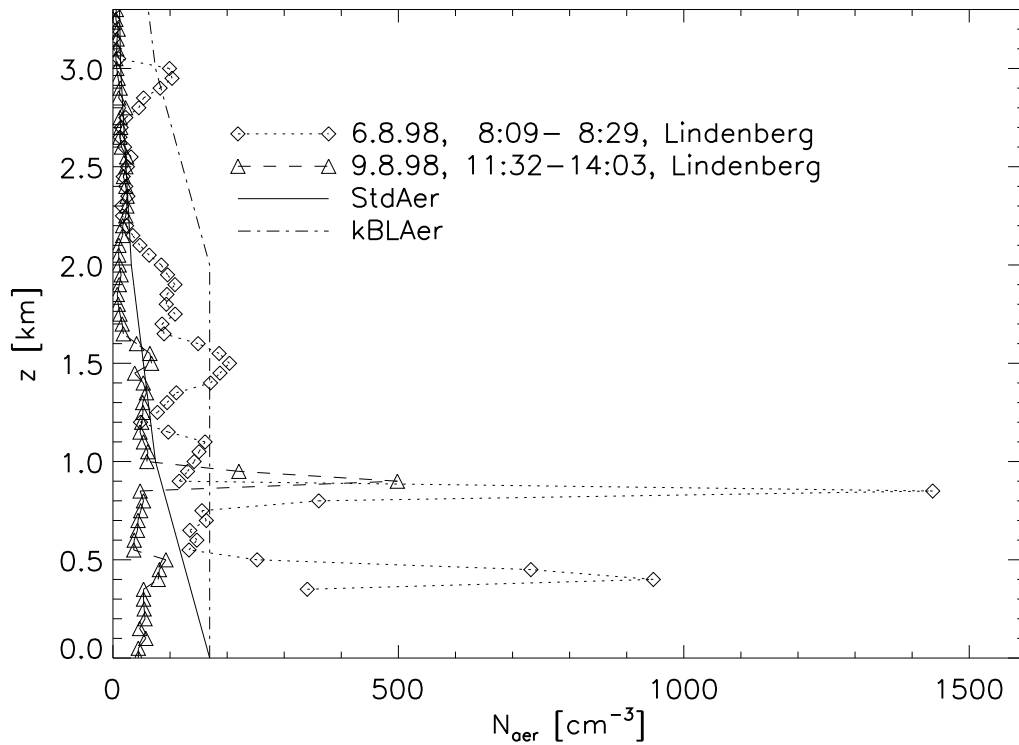


Abbildung 7.3: Vertikalprofil von N_{aer} bei unterschiedlichen Messflügen, für *StdAer* und *kBLAer*.

größenaufgelösten Messungen des Aerosols abgeleitete Modenradius der Aerosolpartikel betrug bei beiden Messflügen $r_m \approx 0.06 \mu\text{m}$. Die angegebene Anzahlkonzentration bezieht sich auf das Radiusintervall von $0.086 \mu\text{m}$ bis $2.08 \mu\text{m}$. Dies sind die Mie-korrigierten Kanalgrenzen (*Wendisch et al.*, 1996) des Aerosolmessgerätes.

Im Vergleich der beiden Profile zeigt sich eine starke Variabilität. Ist das Vertikalprofil vom 9.8.1998 in den unteren 1.5 km nahezu konstant, so weist das Vertikalprofil vom 6.8.1998 im Gegensatz dazu starke vertikale Schwankungen auf. Die starke Variabilität der Aerosolanzahlkonzentration ist auch bei den gemessenen Profilen vom 6.12.1996 in Abb. 6.6 anzutreffen. In diesem Fall war der Zeitraum zwischen den beiden Messungen sehr kurz und betrug lediglich 1 bis 2 Stunden.

Des Weiteren ist in Abb. 7.3 mit der durchgezogenen Linie das Vertikalprofil einer klaren Atmosphäre nach *McClatchey et al.* (1971) mit einer Sichtweite von 23 km dargestellt. Dieses Vertikalprofil wird im Folgenden mit *StdAer* bezeichnet. Die dargestellte Aerosolanzahlkonzentration bezieht sich wiederum auf das Radiusintervall von $0.086 \mu\text{m}$ bis $2.08 \mu\text{m}$. Die strich-punktierte Linie geht ebenfalls aus dem

Vertikalprofil von *McClatchey et al.* (1971) hervor. Dabei hat jedoch die Aerosolanzahlkonzentration innerhalb der Grenzschicht (innerhalb der unteren 2 km) den Wert der Aerosolanzahlkonzentration am Boden des ursprünglichen Profils. Dieses Aerosolprofil wird mit *kBLAer* bezeichnet. Ähnlich wie das gemessene Vertikalprofil der Aerosolanzahlkonzentration vom 9.8.1998 hat auch das Vertikalprofil von *kBLAer* einen konstanten Wert in der Grenzschicht.

Für die Größenverteilung der Aerosolanzahlkonzentration aus *McClatchey et al.* (1971) wurde eine monomodale Verteilungsfunktion angenommen. Für den Modenradius der Verteilungsfunktion wurde ein Wert von $r_m = 0.0285 \mu\text{m}$ und für die Standardabweichung $\sigma_{\text{aer}} = 2.239$ angenommen, was den Verteilungsparametern der wasserlöslichen Aerosolpartikel in *d'Almeida et al.* (1991) entspricht.

Zum Vergleich mit den an den Intensivmesstagen aufgezeichneten, spektralen aktinischen Flüssen und den Tagesgängen von $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}^1\text{D})$ wurde zur Beschreibung des atmosphärischen Aerosolgehaltes auf *StdAer* und *kBLAer* zurückgegriffen. Das Vertikalprofil *kBLAer* kann als obere Abschätzung des atmosphärischen Aerosolgehaltes aufgefasst werden, da der Aerosolgehalt innerhalb der Grenzschicht homogen und damit gut durchmischt ist. Obwohl die Messungen in einigen Höhen eine höhere Aerosolanzahlkonzentration aufweisen als die Aerosolanzahlkonzentration in *kBLAer*, so ist der über die Höhe der Grenzschicht und auch der gesamten Atmosphäre integrierte Aerosolgehalt in *kBLAer* größer als in den Messungen.

Zusätzlich fand ein Vergleich der Messungen des aktinischen Flusses, von $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}^1\text{D})$ mit den Simulationsergebnissen unter vollständiger Vernachlässigung des Aerosols im Strahlungstransportmodell statt. Diese Simulationen werden mit *ohneAer* bezeichnet und können als untere Abschätzung des Aerosoleinflusses gewertet werden.

Für das Aerosol wurde die chemische Zusammensetzung und damit auch die Löslichkeit des urbanen Aerosoltyps nach *Shettle und Fenn* (1979) für das gesamte Vertikalprofil verwendet. Das Aufquellen der Aerosolpartikel wurde mittels der Köhler-Theorie (Gl. (2.14)) berücksichtigt. Die dabei verwendete relative Feuchte der umgebenden Luftmasse wurde den Sondenaufstiegen entnommen (vgl. Abb. 7.2).

Eine zusätzliche Information über den Aerosolgehalt der Atmosphäre lieferte die Angabe der Sichtweite in der Berliner Wetterkarte (Hrsg: Institut für Meteorologie, FU Berlin). Tab. 7.1 enthält diese Sichtweiten für die fünf Messzeitpunkte 6 UTC, 9 UTC, 12 UTC, 15 UTC und 18 UTC an den Intensivmesstagen. Für die Simulationen zwischen diesen Zeitpunkten wurde die Sichtweite interpoliert.

In einer Atmosphäre ohne Aerosol beträgt die Sichtweite etwa 340 km (vgl. Gl. (6.1)). Die in Tab. 7.1 angegebenen Sichtweiten sind deutlich geringer, was auf den Einfluss des Aerosols zurückzuführen ist. Die teilweise starken Schwankungen in der Sichtweite weisen wiederum auf die hohe zeitliche Variabilität des Aerosolgehaltes hin. Die Berechnung der Sichtweite mit Gl. (6.1) ergab bei Verwendung des Aerosolprofils von *McClatchey et al.* (1971) für trockene Aerosolpartikel eine Sichtweite von 59 km. Der Unterschied zu der in *McClatchey et al.* (1971) angegebenen Sichtweite von 23 km ist auf die verwendete Verteilungsfunktion, den Modenradius, die Standardabweichung und den Aerosoltypen zurückzuführen.

Durch Ersetzung des Extinktionskoeffizienten des Aerosols $\beta_{\text{ext,aer}}$ in Gl. (2.47) mit dem skalierten Extinktionskoeffizienten $\beta_{\text{aer,skal}}$ aus Gl. (6.2) konnte die Sichtweite in den Simulationen mit den Aerosolprofilen aus *StdAer* und *kBLAer* auf die in Tab. 7.1 gegebenen Sichtweiten skaliert werden.

Die optischen Eigenschaften der Aerosolpartikel wurden aus ihrer Anzahlgrößenverteilung entsprechend den Gl. (2.32), Gl. (2.31) und Gl. (2.35) abgeleitet.

Wolken

In Tab. 7.1 ist außerdem die Sonnenscheindauer aus der Berliner Wetterkarte, welche für den Messort in Berlin-Dahlem im Intervall von drei Stunden angegeben wird, enthalten. Aus der Sonnenscheindauer lässt sich ein mittlerer Bedeckungsgrad für das 3-Stunden-Intervall berechnen. Wegen der hohen zeitlichen und räumlichen Variation der Bewölkung lassen sich diese Angaben jedoch nur bedingt für den Messstandort auf dem Charité-Gebäude übertragen. Bei partieller Bewölkung sind diese Schwankungen besonders hoch. Somit können diese Angaben lediglich als Hinweis auf eine Bewölkung verstanden werden. Die zeitliche Zuordnung ist jedoch keinesfalls möglich. Aus diesem Grund konnte die Bewölkung nicht exakt modelliert und simuliert werden, sondern nur als Erklärung bei der qualitativen Interpretation der gemessenen und simulierten Strahlungsgrößen dienen.

Wellenlängenauflösung und spektrale Konstanten

Für den Vergleich mit den Messungen des SRM wurde die Wellenlängenauflösung auf $\Delta\lambda = 1 \text{ nm}$ verfeinert, so dass das in Kap. 4 vorgestellte Modell das Spektrum des aktinischen Flusses zwischen $\lambda = 291.5 \text{ nm}$ und $\lambda = 850.5 \text{ nm}$ berechnet. Der extraterrestrische Fluss entspricht bis zu einer Wellenlänge von $\lambda = 407.8 \text{ nm}$ dem

Atlas-3-Spektrum (*VanHoosier*, 1996). Im anschließenden Wellenlängenbereich bis $\lambda = 419.9\text{ nm}$ wurde das Atlas-2-Spektrum aus *Woods et al.* (1996) verwendet. Für Wellenlängen $\lambda > 419.9\text{ nm}$ wurden die Angaben aus dem *WMO-Report* (1986) eingesetzt. Der Absorptionsquerschnitt von Ozon wurde *Daumont et al.* (1992) und der von NO_2 *Mérienne et al.* (1995) entnommen. Die Quantenausbeute $\phi_{\text{NO}+\text{O}}$ stammt aus *DeMore et al.* (1997) und die Quantenausbeute $\phi_{\text{O}(^1\text{D})+\text{O}_2}$ entspricht der aus *Talukdar et al.* (1998).

7.2 Spektraler Vergleich simulierter und gemessener aktinischer Flüsse am Boden

Im folgenden Abschnitt werden die simulierten aktinischen Flüsse aus *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer* mit drei Messungen vom Nachmittag des 8.8.1998 verglichen. Diese Messungen wurden für den Vergleich mit dem 1-dimensionalen Strahlungstransportmodell ausgewählt, da der Nachmittag nahezu wolkenfrei war. Der Sonnenverlauf ergibt einen Sonnenzenitwinkel von 42° um 13 UTC, 57° um 15 UTC und 66° um 16 UTC. Die in Lindenberg gemessene Ozonsäule war im Tagesmittel 301 DU.

8. August 1998, 13 UTC

In der oberen Abb. 7.4 ist der Absolutwert des aktinischen Flusses F_{act} in Photonen $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}\text{nm}^{-1}$ am 8.8.1998 um 13 UTC dargestellt. Die Uhrzeit und geographische Position entsprechen einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 42^\circ$. Die durchgezogene Linie zeigt die Messung des SRM. Die gepunktete Linie bezieht sich auf die Simulationsergebnisse unter Vernachlässigung des Aerosolgehaltes (*ohneAer*). Die gestrichelte Linie basiert auf Modellrechnungen mit Aerosol. Hierbei wurde das Vertikalprofil der Aerosolanzahlkonzentration nach *McClatchey* (1971) verwendet (*StdAer*). Die strich-punktierte Linie resultiert aus der Simulation für das Vertikalprofil der Aerosolanzahlkonzentration mit konstantem Wert in der Grenzschicht (*kBLAer*). Der aktinische Fluss aus *ohneAer* ist größer sowohl als die simulierten aktinischen Flüsse unter Berücksichtigung des Aerosolgehaltes als auch des gemessenen Spektrums. Die größere optische Dicke in *kBLAer* mit einem Wert von $\tau_{\text{aer}} = 0.76$ bei $\lambda = 300\text{ nm}$ und $\tau_{\text{aer}} = 0.52$ bei $\lambda = 550\text{ nm}$ verursacht eine stärkere Schwächung des aktinischen Flusses als die geringere optische Dicke von $\tau_{\text{aer}} = 0.38$ bei $\lambda = 300\text{ nm}$

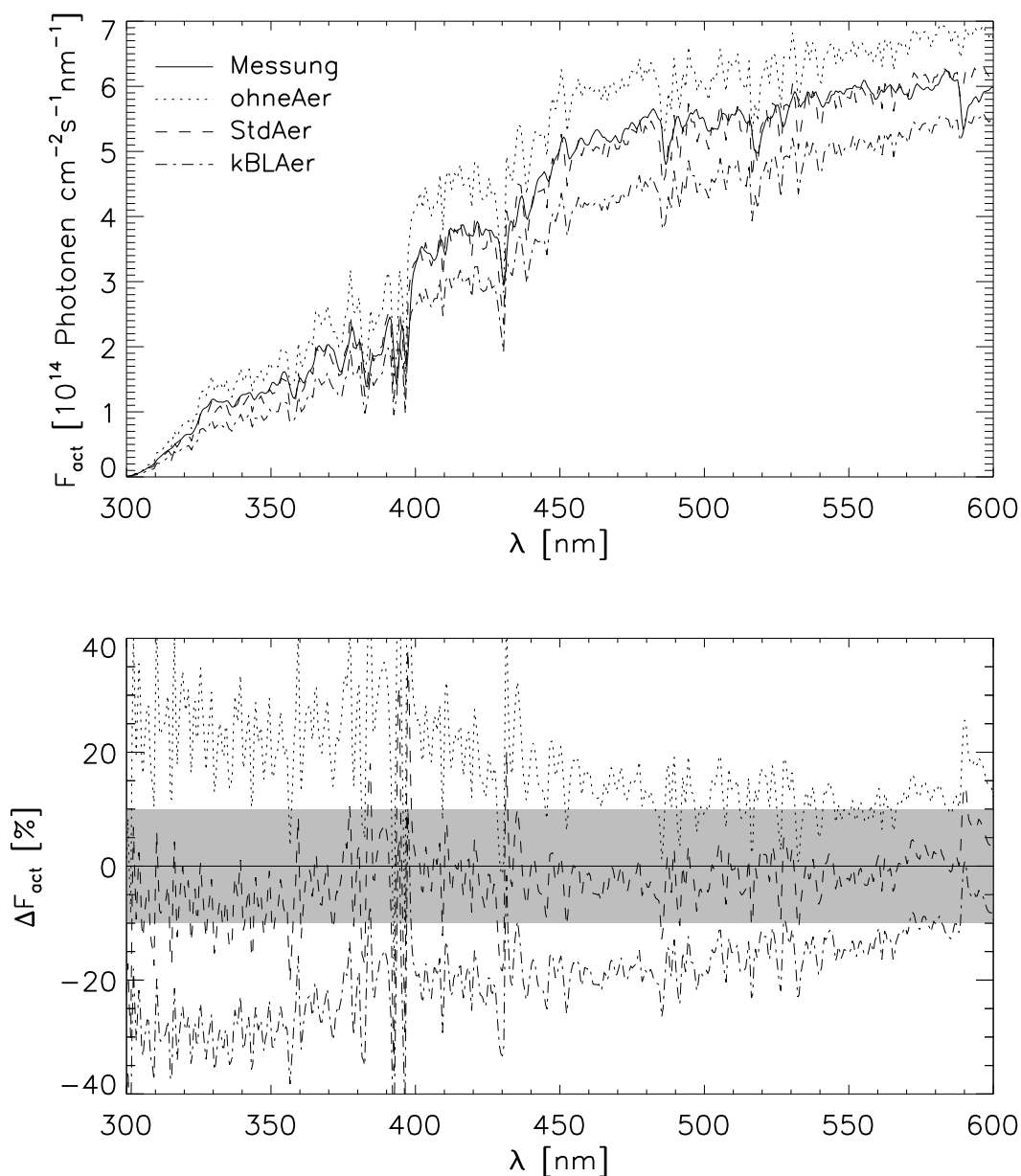


Abbildung 7.4: F_{act} und ΔF_{act} um 13 UTC aus der Messung des SRM und den Simulationen *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer*.

und $\tau_{\text{aer}} = 0.27$ bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ in *StdAer* im Vergleich zum aktinischen Fluss aus *ohneAer*.

Der gemessene aktinische Fluss liegt zwischen den beiden Simulationsergebnissen aus *ohneAer* und *kBLAer*, welche eine untere (*ohneAer*) bzw. obere Abschätzung des Aerosoleinflusses (*kBLAer*) darstellen.

Die untere Abbildung beschreibt die prozentuale Abweichung ΔF_{act} von F_{act} aus *ohneAer* (gepunktete Linie), *StdAer* (gestrichelte Linie) und *kBLAer* (strich-punktierte Linie) zu den Messungen des aktinischen Flusses. Die Abweichung von $\pm 10\%$, welche der Messungsgenauigkeit des SRM entspricht, ist grau schattiert.

Im Wesentlichen ist ΔF_{act} von F_{act} aus *StdAer* zum gemessenen F_{act} kleiner 10%. Die größten Abweichungen treten im Wellenlängenbereich der Kalziumlinien zwischen 390 nm und 400 nm und bei Wellenlängen $\lambda > 590$ nm auf.

Im Bereich zwischen $\lambda = 590$ nm und $\lambda = 600$ nm findet eine leichte Absorption durch Wasserdampf statt, welche in den dargestellten Simulationen jedoch vernachlässigt wurde. Der Absorptionsquerschnitt von Wasserdampf ist zwar sehr gering in diesem Wellenlängenbereich (ca. $5 \cdot 10^{-25} \text{cm}^2$), die Anzahl an Wasserdampfmolekülen N_{vap} ist jedoch hoch. Der Wert von N_{vap} beträgt bei dieser Simulation am Boden $6.29 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$. Die hohe relative Feuchte (vgl. Abb. 7.3), welche an diesem Nachmittag vorherrschte, verursacht diese relativ großen Abweichungen zwischen den gemessenen und simulierten aktinischen Flüssen.

Der aktinische Fluss aus *ohneAer* überschätzt den gemessenen aktinischen Fluss bei Wellenlängen $\lambda < 400$ nm im Mittel um etwa 20% und bei Wellenlängen $\lambda > 400$ nm um etwa 15%. Der aktinische Fluss aus *kBLAer* unterschätzt den gemessenen aktinischen Fluss bei $\lambda = 300$ nm um etwa 30%. Mit zunehmender Wellenlänge wird diese Abweichung geringer. Das Aerosolprofil aus *StdAer* scheint den atmosphärischen Aerosolgehalt gut zu repräsentieren.

8. August 1998, 15 UTC

Der obere Teil der Abb. 7.5 zeigt den aktinischen Fluss um 15 UTC bei einem Sonnenzenitwinkel von 57° . Der Absolutbetrag des aktinischen Flusses ist bei allen Simulationen und den Messungen geringer als um 13 UTC. Begründet liegt dies in der Verlängerung des Photonenweges auf Grund des niedrigeren Sonnenstandes. Auch die Differenz zwischen F_{act} aus *StdAer* und *kBLAer* zu F_{act} aus *ohneAer* ist größer als beim Vergleich von 13 UTC (vgl. Abb. 7.4). Dies ist zum einen ein Resultat der Verlängerung des Photonenweges durch die Atmosphäre und zum anderen verursacht durch die etwas geringere Sichtweite von 33 km im Vergleich zu 36 km um 13 UTC.

Die Abweichungen zwischen gemessenem und simuliertem aktinischen Fluss unter Berücksichtigung des atmosphärischen Aerosolgehaltes *StdAer* liegen auch bei dem

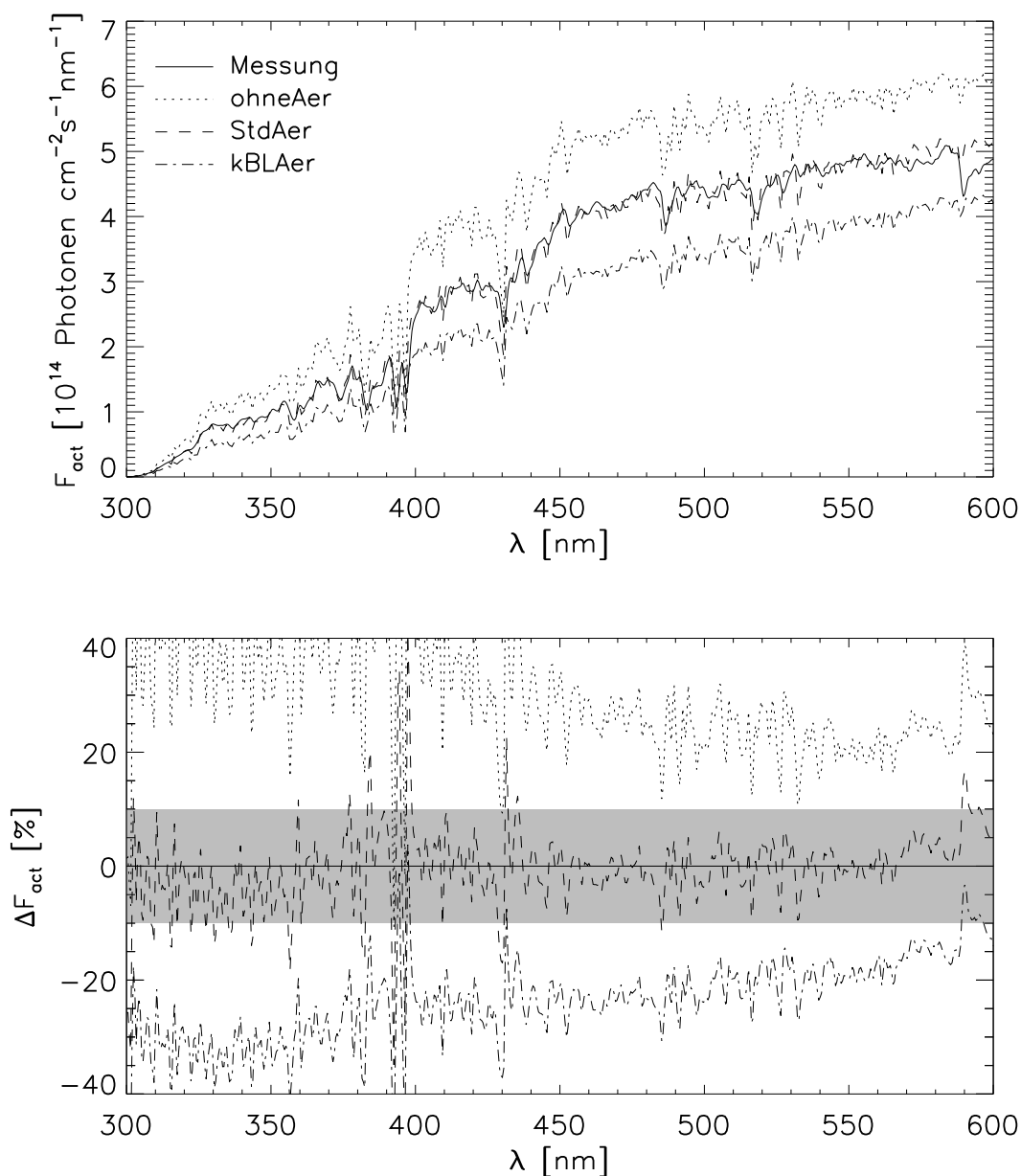


Abbildung 7.5: F_{act} und ΔF_{act} um 15 UTC aus der Messung des SRM und den Simulationen *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer*.

etwas geringeren Sonnenzenitwinkel im Wesentlichen innerhalb von $\pm 10\%$.

Die Abweichungen sind wiederum bei Wellenlängen im Bereich der Kalziumlinien, aber auch im Wellenlängenbereich zwischen 590 nm und 600 nm größer als im restlichen Spektrum. Im Vergleich zur Simulation um 13 UTC (vgl. Abb. 7.4) sind die Abweichungen bei Wellenlängen zwischen 590 nm und 600 nm um 15 UTC größer,

da mit zunehmendem Sonnenzenitwinkel, und damit auch längerem Weg für die Photonen durch die Atmosphäre, die Absorption durch Wasserdampfmoleküle an Bedeutung gewinnt.

8. August 1888, 16 UTC

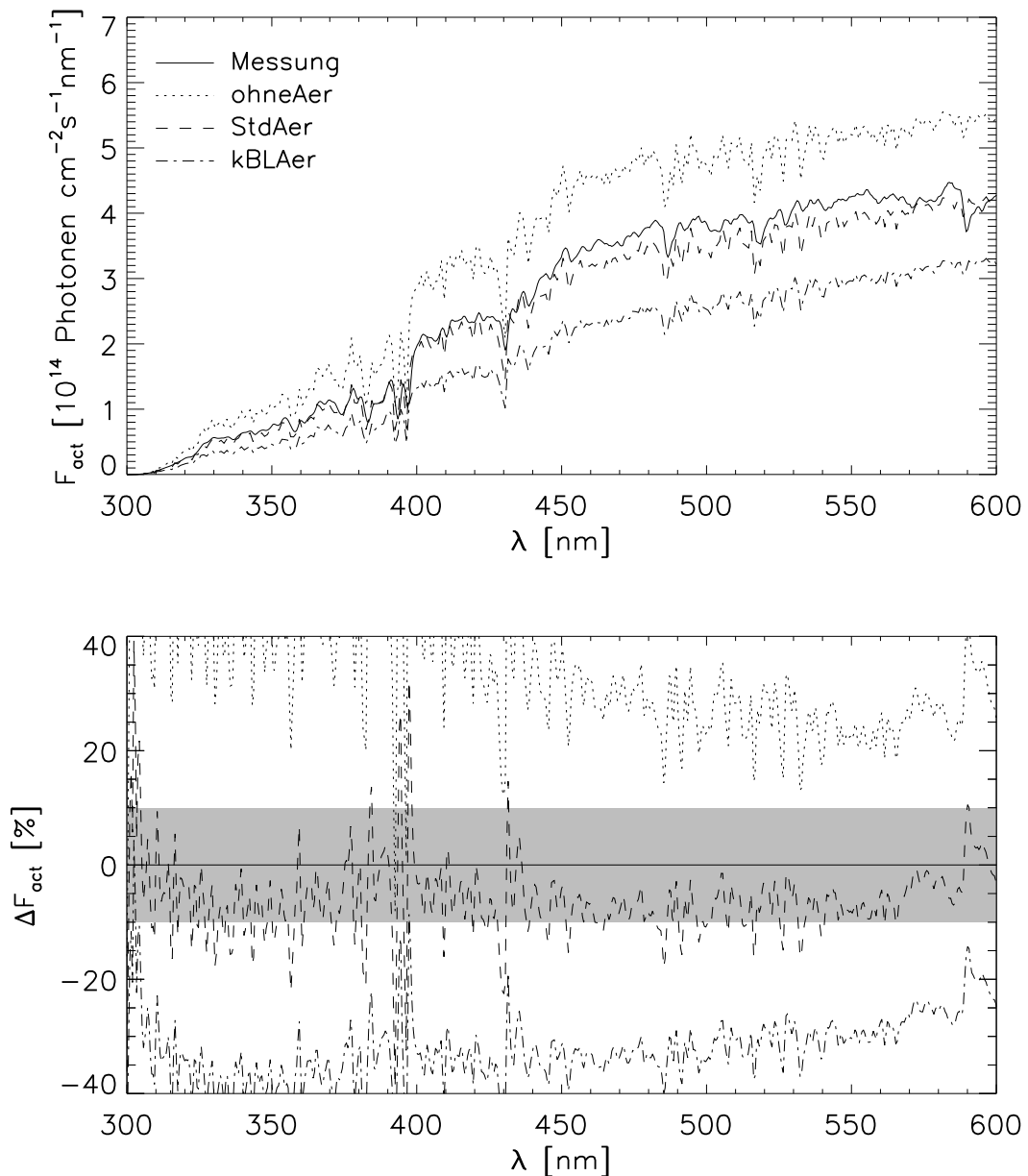


Abbildung 7.6: F_{act} und ΔF_{act} um 16 UTC aus der Messung des SRM und den Simulationen *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer*.

Abb. 7.6 zeigt den aktinischen Fluss von 16 UTC mit $\vartheta_0 = 66^\circ$. Die Differenz von F_{act} aus *StdAer* und *kBLAer* zu F_{act} aus *ohneAer* ist noch etwas größer als bei der Simulation um 15 UTC, da der Weg durch die Atmosphäre durch den größeren Sonnenzenitwinkel weiter verlängert wurde.

Die Abweichungen von F_{act} aus *StdAer* zu den Messungen des aktinischen Flusses sind größer als bei den beiden zuvor gezeigten Fällen um 13 UTC und 15 UTC. Die Simulationsergebnisse unterschätzen den gemessenen aktinischen Fluss im Mittel um etwa 8%. Eine möglich Ursache hierfür liegt in den Aerosoleigenschaften. Ein geringerer Aerosolgehalt in der Atmosphäre erhöht die Simulationsergebnisse für den aktinischen Fluss. Selbst wenn die Bodenkonzentration, welche auf die herrschende Sichtweite skaliert ist, beibehalten würde, könnte eine Veränderung des Vertikalprofils durch eine Verminderung der Aerosolanzahlkonzentration in höheren Bereichen eine solche Reduktion des aktinischen Flusses bewirken. Da wegen der Verlängerung des Photonenweges durch die Atmosphäre die Auswirkungen des Aerosols immer größere Bedeutung gewinnen, wird die exakte Bestimmung der Aerosoleigenschaften mit zunehmendem Sonnenzenitwinkel wichtiger. Eine kleine Veränderung der Aerosoleigenschaften führt bei großen Sonnenzenitwinkeln bereits zu großen Veränderungen des resultierenden aktinischen Flusses.

7.3 Vergleich simulierter und gemessener Tagesgänge von $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$

Im folgenden Abschnitt werden die aus den Messungen des aktinischen Flusses abgeleiteten Tagesgänge von $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{M}}(\text{O}(^1\text{D}))$ an den vier Intensivmesstagen 20.7.1998, 21.7.1998, 6.8.1998 und 8.8.1998 der BERLIOZ-Messkampagne mit den Werten von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{S}}(\text{O}(^1\text{D}))$ verglichen. In dem hier dargestellten Vergleich werden die Simulationsergebnisse aus *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer* in wolkenfreier Atmosphäre verwendet, welche mit dem 1-dimensionalen δ -Vier-Strom-Verfahren berechnet wurden.

20. Juli 1998

Der obere Teil der Abb. 7.7 zeigt einen Vergleich zwischen $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ für den 20.7.1998. Dabei bezieht sich die gepunktete Linie auf die Simulation *ohneAer*, die gestrichelte Linie auf die Simulation *StdAer* und die strich-punktierte Linie auf

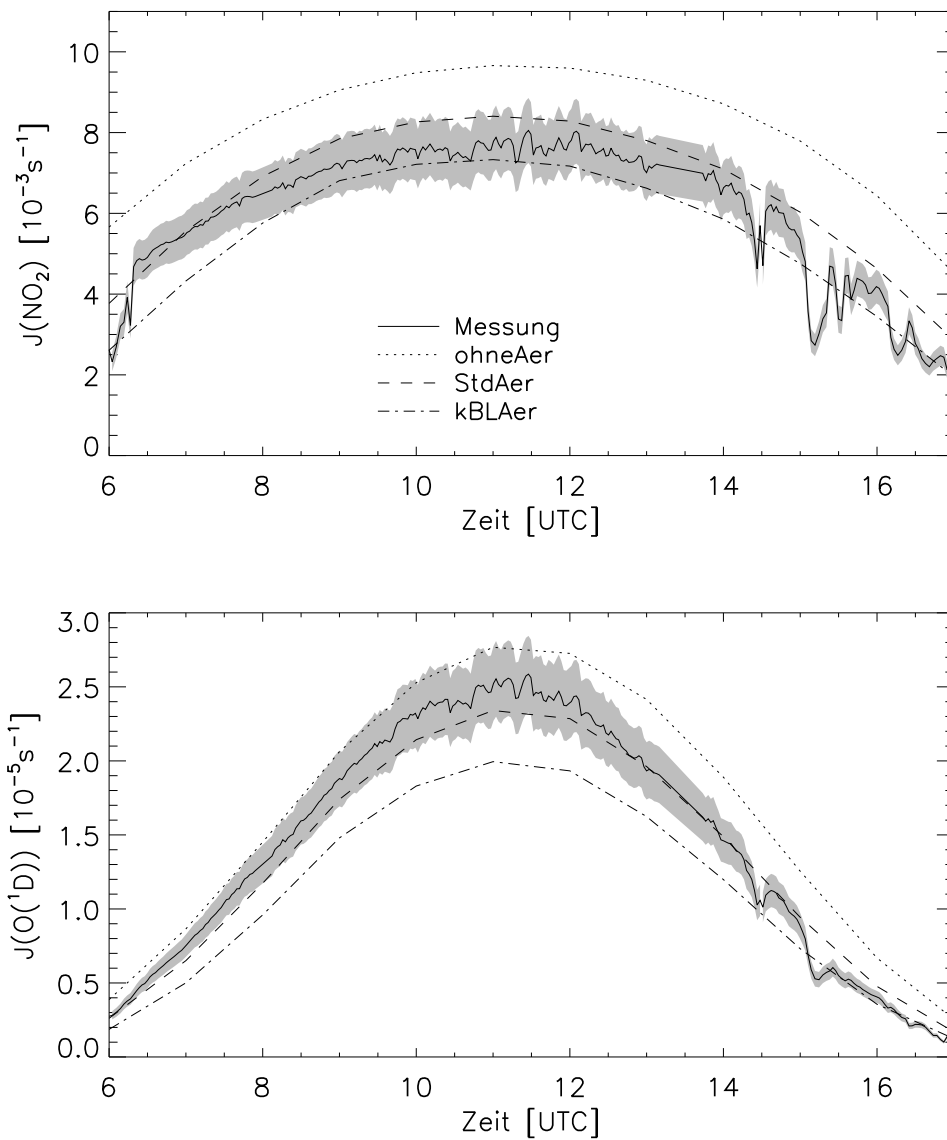


Abbildung 7.7: Oben: Tagesgang von $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_S(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer* am 20.7.1998. Unten: Analog für $J_M(\text{O}(^1\text{D}))$ und $J_S(\text{O}(^1\text{D}))$.

die Simulation *kBLAer*. Das graue Band um die Messungen beschreibt die 10% Messungenauigkeit des SRM. Der untere Teil der Abb. 7.7 beschreibt analog den Tagesgang von $J(\text{O}(^1\text{D}))$.

Zunächst ist anzumerken, dass die gemessenen Tagesgänge von $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_M(\text{O}(^1\text{D}))$ im Wesentlichen innerhalb der Simulationsergebnisse von $J_S(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer* als unterer Abschätzung des Aerosoleinflusses und *kBLAer* als oberer Abschätzung des Aerosoleinflusses liegen. Auffällig sind jedoch die starken Schwan-

kungen von $J_M(\text{NO}_2)$ von 6 UTC bis 6:30 UTC und zwischen 15 UTC und 17 UTC. $J_M(\text{NO}_2)$ ist dabei im Vergleich zu $J_S(\text{NO}_2)$ aus *StdAer* stark reduziert. Die aus den Messungen abgeleiteten Werte von $J_M(\text{NO}_2)$ sind zu diesen Zeiten teilweise sogar geringer als die simulierten $J_S(\text{NO}_2)$ aus *kBLAer*. Daraus lässt sich auf eine Bewölkungssituation schließen. Auch die Bewölkungssituation, welche aus der Berliner Wetterkarte abgeleitet wurde, weist auf eine leichte Bewölkung nach 15 UTC hin (vgl. Tab. 7.1).

Die relativ große optische Dicke einer Wolke führt zu einem Abschattungseffekt unterhalb der Wolke. Der aktinische Fluss unterhalb der Wolke ist dadurch geringer und damit auch die daraus abgeleiteten Photodissoziationsfrequenzen.

Die Werte von $J_M(\text{O}^1\text{D})$ unterliegen in diesem Zeitraum wesentlich geringeren Schwankungen im Vergleich zu $J_M(\text{NO}_2)$. Ursache hierfür könnte eine optisch sehr dünne Wolke (etwa mit $\tau_{\text{wol}} \approx 1$) sein. Dieses τ_{wol} wäre zwar größer als die optische Dicke der Rayleigh-Streuung und des Aerosols in dem für $J(\text{NO}_2)$ relevanten Wellenlängenbereich zwischen 350 nm und 400 nm (vgl. Abb. 4.3), aber deutlich kleiner als die optische Dicke der Ozonabsorption in dem für $J(\text{O}^1\text{D})$ relevanten Wellenlängenbereich zwischen 300 nm und 310 nm (vgl. Abb. 4.5). Aus diesem Grund wären die Auswirkungen einer Wolke mit einer optischen Dicke $\tau_{\text{wol}} \approx 1$ auf $J(\text{NO}_2)$ deutlich, die jedoch auf $J(\text{O}^1\text{D})$ gering.

Vernachlässigt man die durch die Bewölkung verursachten Schwankungen der gemessenen Photodissoziationsfrequenzen, so findet man eine gute Übereinstimmung zwischen Messungen und Simulationsergebnissen aus *StdAer*. Die Abweichungen liegen im Wesentlichen innerhalb der Messungenauigkeit des SRM. Die Werte von $J_S(\text{NO}_2)$ aus *StdAer* überschätzen $J_M(\text{NO}_2)$ nahezu während des gesamten Tagesganges leicht. Im Gegensatz dazu unterschätzt $J_S(\text{NO}_2)$ aus *kBLAer* $J_M(\text{NO}_2)$ nahezu während des gesamten Tagesganges. Lediglich bei den Bewölkungssituationen nach 14 UTC ist $J_M(\text{NO}_2)$ geringer als $J_S(\text{NO}_2)$ aus *kBLAer*.

Die Übereinstimmung von $J_M(\text{O}^1\text{D})$ und $J_S(\text{O}^1\text{D})$ aus *StdAer* liegt ebenfalls im Wesentlichen innerhalb der 10% Messungenauigkeit des SRM. Allerdings unterschätzt $J_S(\text{O}^1\text{D})$ den Wert von $J_M(\text{O}^1\text{D})$ bis 13 UTC leicht. Im Gegensatz dazu überschätzte $J_S(\text{NO}_2)$ aus *StdAer* den gemessenen Wert von $J_M(\text{NO}_2)$. Die Ursache für dieses unterschiedliche spektrale Verhalten kann zum einen in einer optisch dünnen Wolke (siehe oben) liegen. Zum anderen kann aber auch eine veränderte chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel im Vergleich zu der angenommenen chemischen Zusammensetzung von urbanem Aerosol für dieses unterschiedliche spek-

trale Verhalten verantwortlich sein. Es ist aber auch möglich, dass der Ozongehalt der Atmosphäre am Vormittag geringer war als der in der Simulation verwendete Tagesmittelwert. Wie bereits in Abschnitt 5.2 diskutiert, hat eine Veränderung des Ozongehaltes deutlich höhere Auswirkungen auf $J(\text{O}^1\text{D})$ als auf $J(\text{NO}_2)$. Eine geringerer Ozongehalt erhöht $J(\text{O}^1\text{D})$, wogegen $J(\text{NO}_2)$ nahezu unbeeinflusst davon bleibt.

| Uhrzeit | $\Delta J(\text{NO}_2)$, % | $\Delta J(\text{O}^1\text{D})$, % |
|---------|-----------------------------|------------------------------------|
| 07 | -1.2 | -18.8 |
| 08 | +7.8 | -6.6 |
| 09 | +8.7 | -7.5 |
| 10 | +8.1 | -9.2 |
| 11 | +7.9 | -7.3 |
| 12 | +3.2 | -6.3 |
| 13 | +11.3 | +1.5 |
| 14 | +7.0 | +1.9 |

Tabelle 7.2: Prozentuale Abweichung von $J_S(\text{NO}_2)$ und $J_S(\text{O}^1\text{D})$ aus *StdAer* zu $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_M(\text{O}^1\text{D})$ für unterschiedliche Zeitpunkte am 20.7.1998.

Tab. 7.2 enthält die prozentualen Abweichungen von $J_S(\text{NO}_2)$ und $J_S(\text{O}^1\text{D})$ aus *StdAer* zu $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_M(\text{O}^1\text{D})$. Aus Tab. 7.2 wird ersichtlich, dass $\Delta J(\text{NO}_2)$ in der Zeit zwischen 7 UTC und 12 UTC und um 14 UTC innerhalb der 10% Messungenauigkeit des SRM liegt. $\Delta J(\text{O}^1\text{D})$ liegt nur für die Simulationen um 7 UTC außerhalb der 10% Messungenauigkeit.

Mit der beschriebenen Abschätzung für den atmosphärischen Aerosolgehalt in *StdAer* lässt sich der gemessene Tagesgang der Photodissoziationsfrequenzen sehr gut simulieren. Größere zeitlich begrenzte Abweichungen der gemessenen Photodissoziationsfrequenzen zu den simulierten Photodissoziationsfrequenzen lassen auf Bewölkungssituationen zurückschließen.

21. Juli 1998

Abb. 7.8 zeigt die beiden Photodissoziationsfrequenzen für den 21.7.1998. Die obere Abbildung enthält wiederum den Tagesgang von $J(\text{NO}_2)$ und die untere Abbildung den von $J(\text{O}^1\text{D})$.

Die relativ geringe Sichtweite (vgl. Tab. 7.1) an diesem Tag lässt auf einen hohen

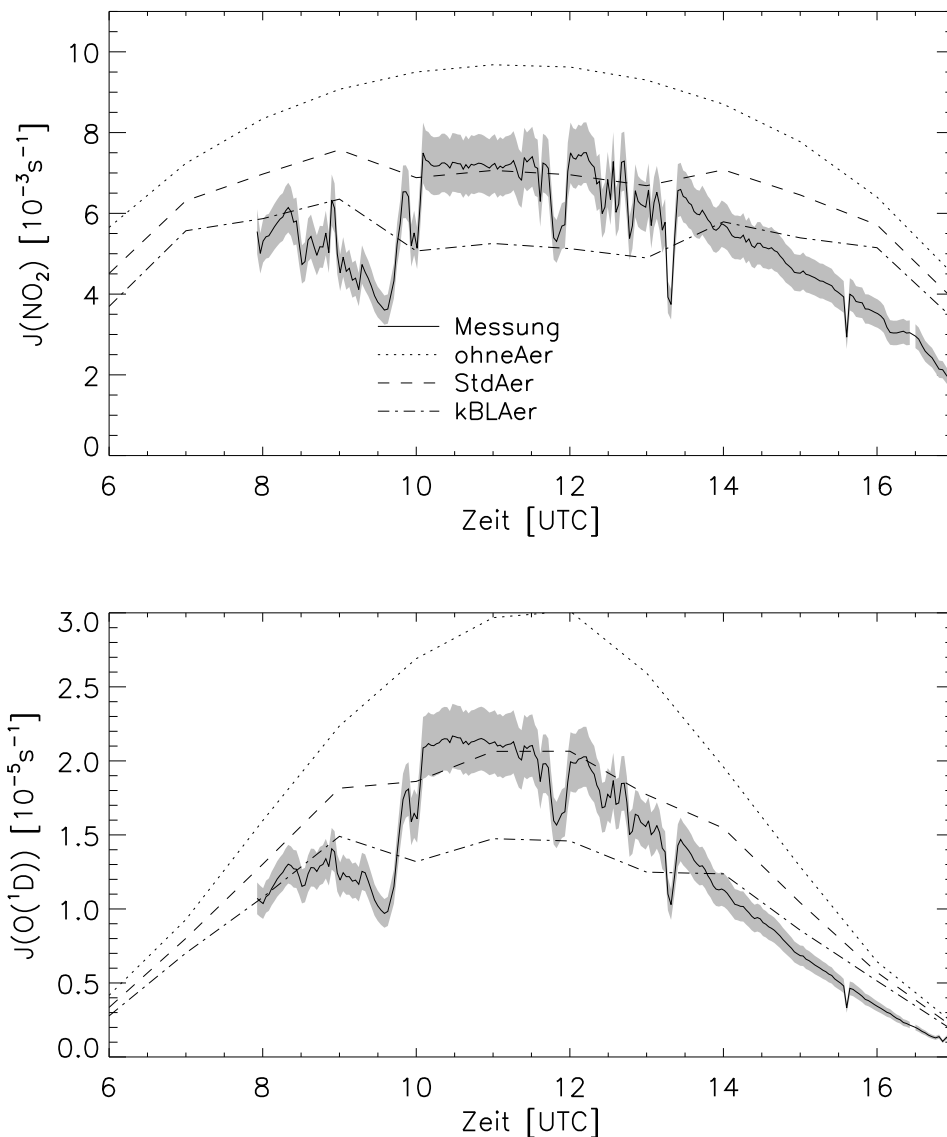


Abbildung 7.8: Oben: Tagesgang von $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_S(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer* am 21.7.1998. Unten: Analog für $J_M(\text{O}(^1\text{D}))$ und $J_S(\text{O}(^1\text{D}))$.

Aerosolgehalt der Atmosphäre zurückschließen. Damit ist eine starke Reduktion der simulierten Photodissoziationsfrequenzen mit Aerosol (*StdAer* und *kBLAer*) im Vergleich zu den Photodissoziationsfrequenzen unter Vernachlässigung des Aerosols (*ohneAer*) verbunden.

Zum Zeitpunkt des Sonnenhöchststandes um 11 UTC betrug die optische Dicke des Aerosols in *StdAer* bei $\lambda = 300 \text{ nm}$ $\tau_{\text{aer}} = 0.56$ und in *kBLAer* $\tau_{\text{aer}} = 1.08$. In *StdAer* war bei $\lambda = 550 \text{ nm}$ die optische Dicke des Aerosols $\tau_{\text{aer}} = 0.38$ und in *kBLAer*

$\tau_{\text{aer}} = 0.71$. Diese hohen optischen Dicken des Aerosols führten zu einer Reduktion des Tagesmaximums von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ aus *StdAer* im Vergleich zu $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer* um 27% und von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ aus *kBLAer* im Vergleich zu $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer* um 46%. Das Tagesmaximum von $J_{\text{S}}(\text{O}(^1\text{D}))$ erfährt in *StdAer* im Vergleich zu *ohneAer* eine Reduktion um 30% und in *kBLAer* eine um 50%.

In der Zeit zwischen 8 UTC und 10 UTC weisen die gemessenen $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{M}}(\text{O}(^1\text{D}))$ auf Bewölkung hin. Auch die mittlere Sonnenscheindauer der Berliner Wetterkarte in diesem Zeitraum (vgl. Tab. 7.1) lässt auf Bewölkung schließen. In der Zeit zwischen 10 UTC und 11:30 UTC sind die Abweichungen zwischen $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ aus *StdAer* gering. Der relativ hohe Aerosolgehalt der Atmosphäre verursacht eine deutliche Abflachung des Tagesganges sowohl der gemessenen $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ als auch der simulierten $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$. Die starken Schwankungen der gemessenen Photodissoziationsfrequenzen nach 11:30 UTC lassen wiederum auf Bewölkung schließen. Im Vergleich der beiden Tagesmaxima von $J_{\text{S}}(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *ohneAer* am 20.7.1998 und am 21.7.1998 zeigt sich, dass das Tagesmaximum am 20.7.1998 $2.77 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ und am 21.7.1998 $3.01 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ beträgt. Damit ist das Tagesmaximum am 21.7.1998 von $J_{\text{S}}(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *ohneAer* größer als am 20.7.1998, obwohl der Sonnenzenitwinkel zum Zeitpunkt des Sonnenhöchststandes um 11 UTC am 20.7.1998 mit $\vartheta_0 = 31.92^\circ$ kleiner war als am 21.7.1998 mit $\vartheta_0 = 32.10^\circ$. Die Tagesmaxima von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer* betragen am 20.7.1998 $9.66 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ und am 21.7.1998 $9.68 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ und sind damit nahezu identisch. Verursacht ist das höhere Tagesmaximum von $J_{\text{S}}(\text{O}(^1\text{D}))$ am 21.7.1998 durch den geringeren Tagesmittelwert der Ozonsäule (vgl. Tab. 7.1).

6. August 1998

Abb. 7.9 zeigt die beiden Photodissoziationsfrequenzen für den 6.8.1998. Die starken Variationen der Photodissoziationsfrequenzen $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{M}}(\text{O}(^1\text{D}))$ lassen auf eine durchbrochene Bewölkungssituation schließen (vgl. Tab. 7.1). Befindet sich eine Wolke zwischen Messgerät und Sonne, so überwiegt der Abschattungseffekt. Die Photodissoziationsfrequenz wird dadurch reduziert. Fällt jedoch direktes Licht auf das Messgerät, so kann die mittlere Photodissoziationsfrequenz durch die Effekte an den seitlichen Wolkenrändern erhöht werden. Besonders deutlich sichtbar ist diese Erhöhung gegen 11 UTC. Die starken Variationen von $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{M}}(\text{O}(^1\text{D}))$ lassen auf einen häufigen Wechsel zwischen bewölktem und klarem Himmel schließen.

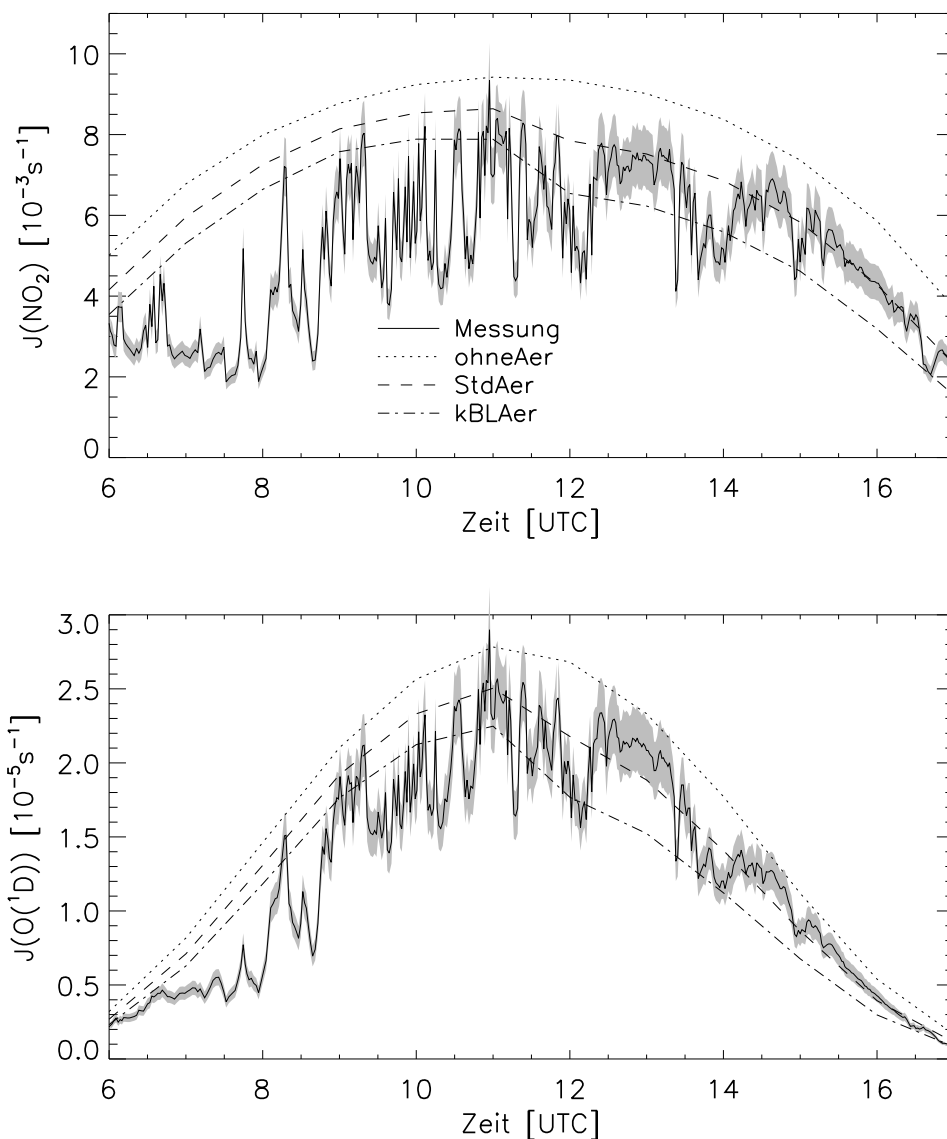


Abbildung 7.9: Oben: Tagesgang von $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_S(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer* am 6.8.1998. Unten: Analog für $J_M(\text{O}(^1\text{D}))$ und $J_S(\text{O}(^1\text{D}))$.

Wegen der hohen Sichtweite an diesem Tag (vgl. Tab. 7.1) ist die Differenz zwischen den Simulationen mit und ohne Aerosol gering. Die Verminderung des Tagesmaximums von $J_S(\text{NO}_2)$ aus *StdAer* betrug daher nur 8.3% und von $J_S(\text{NO}_2)$ aus *kBLAer* 16.3% im Vergleich zu $J_S(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer*.

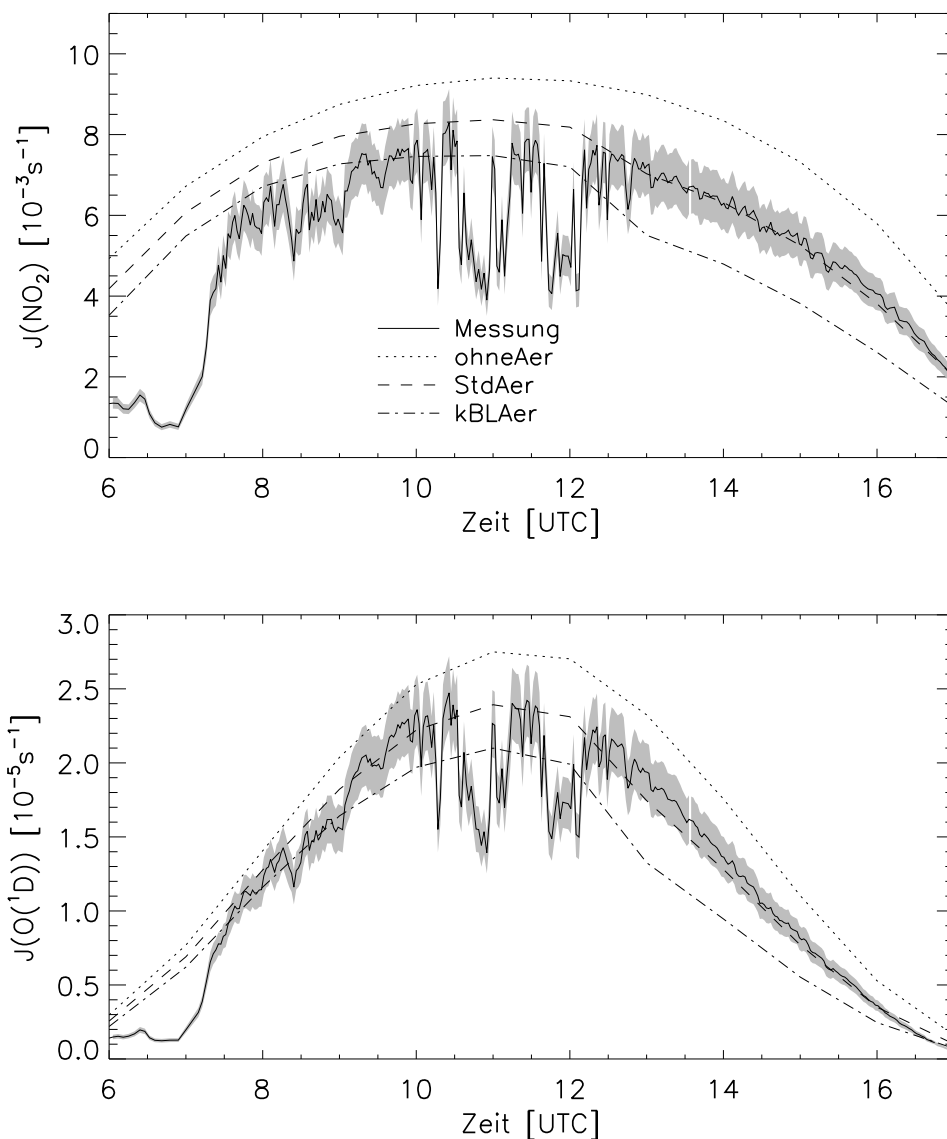


Abbildung 7.10: Oben: Tagesgang von $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_S(\text{NO}_2)$ aus *ohneAer*, *StdAer* und *kBLAer* am 8.8.1998. Unten: Analog für $J_M(\text{O}(^1\text{D}))$ und $J_S(\text{O}(^1\text{D}))$.

8. August 1998

Abb. 7.10 zeigt die Tagesgänge der beiden Photodissoziationsfrequenzen $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$ am 8.8.1998. Die Sonnenscheindauer aus der Berliner Wetterkarte weist für diesen Tag auf häufig wechselnde Bewölkung hin. Die Messungen des aktinischen Flusses deuten auf eine starke Bewölkung von 6 UTC bis 7 UTC und auf häufig wechselnde Bewölkungssituationen bis 13 UTC hin. Nach 13 UTC lassen

die gemessenen F_{act} auf eine wolkenfreie Atmosphäre schließen. Während dieses Zeitraumes sind die Abweichungen zwischen $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ aus *StdAer* sehr gering. Die prozentualen Abweichungen zwischen $J_{\text{M}}(\text{O}(^1\text{D}))$ und $J_{\text{S}}(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *StdAer* sind etwas größer, aber dennoch bis auf die Simulation um 17 UTC innerhalb der 10% Messungenauigkeit des SRM.

| Uhrzeit | $\Delta J(\text{NO}_2)$, % | $\Delta J(\text{O}(^1\text{D}))$, % |
|---------|-----------------------------|--------------------------------------|
| 13 | -2.9 | -9.9 |
| 14 | +0.4 | -6.0 |
| 15 | -3.0 | -3.6 |
| 16 | -3.7 | +5.1 |
| 17 | +3.6 | +90.0 |

Tabelle 7.3: Prozentuale Abweichung von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{S}}(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *StdAer* zu $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{M}}(\text{O}(^1\text{D}))$ für unterschiedliche Zeitpunkte am 8.8.1998.

In Tab. 7.3 sind die prozentualen Abweichungen von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{S}}(\text{O}(^1\text{D}))$ aus *StdAer* zu $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ und $J_{\text{M}}(\text{O}(^1\text{D}))$ aufgelistet. $\Delta J(\text{NO}_2)$ liegt dabei für den dargestellten Zeitraum innerhalb der 10% Messungenauigkeit des SRM. $\Delta J(\text{O}(^1\text{D}))$ dagegen liegt bis auf die Simulation um 17 UTC auch innerhalb der Messungenauigkeit des SRM. Um 17 UTC ist die Abweichung jedoch sehr groß.

7.4 Zusammenfassende Bemerkungen

Der spektrale Vergleich der gemessenen und simulierten aktinischen Flüsse aus *StdAer* zeigte eine gute Übereinstimmung. Im Wesentlichen lagen die Abweichungen innerhalb der Messungenauigkeit des SRM. Die Simulationsergebnisse aus *ohneAer* können als untere Abschätzung des Aerosoleffekts und die Simulationsergebnisse aus *kBLAer* als obere Abschätzung des Aerosoleffekts aufgefasst werden.

Außerdem zeigte sich deutlich, dass der Einfluss der atmosphärischen Extingenten bei zunehmendem Sonnenzenitwinkel größer wird, da sich der Weg durch die Atmosphäre verlängert.

Aus den Vergleichen der Tagesgänge simulierter und gemessener Werte von $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$ lässt sich zunächst eine gute Übereinstimmung während der wolkenfreien Perioden erkennen. Während dieser Zeiträume lagen die Simulationsergebnisse aus *StdAer* meist innerhalb der Messungenauigkeit des SRM. Die Simulationser-

gebnisse aus *ohneAer* und *kBLAer* ließen sich während der unbewölkten Zeiträume auch bei den Tagesgängen der Photodissoziationsfrequenzen als untere und obere Abschätzung des Aerosoleffekts interpretieren.

Die aus den Messungen abgeleiteten Werte für $J_M(\text{NO}_2)$ und $J_M(\text{O}(^1\text{D}))$ zeigen mehr oder weniger starke zeitliche Schwankungen während der Tagesgänge, welche auf eine wechselnde Bewölkung mit Wolken unterschiedlicher optischer Dicke zurückschließen lassen. Diese Schwankungen zeigen zum Teil Erhöhungen, aber auch starke Verminderungen gegenüber den mittleren Photodissoziationsfrequenzen.

Aus der prozentualen Verminderung von $J_S(\text{NO}_2)$ und $J_S(\text{O}(^1\text{D}))$ bei Berücksichtigung des atmosphärischen Aerosolgehaltes im Vergleich zu den Simulationsergebnissen unter vollständiger Vernachlässigung des Aerosols lässt sich der Aerosoleinfluss auf die Photodissoziationsfrequenzen ableiten. Der Vergleich der Tagesgänge von $J_S(\text{O}(^1\text{D}))$ unter Vernachlässigung des Aerosolgehaltes bei unterschiedlicher Ozonsäule verdeutlicht den Einfluss des Ozons.

Als Resultat dieses Vergleichs lässt sich zusammenfassen, dass die Kenntnis der Aerosoleigenschaften zur Simulation von aktinischen Flüssen und $J(\text{NO}_2)$ von großer Bedeutung sind. Zur Bestimmung des aktinischen Flusses bei Wellenlängen bis 320 nm und die Bestimmung von $J(\text{O}(^1\text{D}))$ ist zusätzlich die exakte Kenntnis der atmosphärischen Ozonkonzentration und der Gesamtozonsäule notwendig.

Kapitel 8

Die Auswirkungen durchbrochener Bewölkung auf das Strahlungsfeld

Zu den bisherigen Betrachtungen des Strahlungstransports in horizontal homogener Atmosphäre sollen in den folgenden Abschnitten die Auswirkungen horizontaler Inhomogenitäten untersucht werden. Von besonderem Interesse ist hierbei die Auswirkung von durchbrochener Bewölkung auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre. Dazu wurde auf Basis von BERLIOZ-Messdaten zunächst ein 2-dimensionales $J(\text{NO}_2)$ -Feld unter Einfluss von partieller Bewölkung simuliert. In der Simulation dienten periodische Randbedingungen zur Darstellung eines unendlich ausgedehnten Wolkenfeldes mit partieller Bewölkung. An Hand dieses Feldes werden die Effekte des 2-dimensionalen Strahlungstransports diskutiert. Zum Vergleich wurde das gleiche Modellgebiet mit offenen Randbedingungen gerechnet. Eine weitere Untersuchung beschäftigte sich mit der Auswirkung von urbanem Aerosol auf das $J(\text{NO}_2)$ -Feld bei durchbrochener Bewölkung.

Im Weiteren werden die Ergebnisse der 2-dimensionalen Simulationen mit approximierten Werten für eine durchbrochene Bewölkung verglichen.

Den letzten Teil dieses Kapitels bildet der Vergleich zwischen dem gemessenen Tagesgang des Bodenwertes von $J(\text{NO}_2)$ und den Ergebnissen der 2-dimensionalen Simulationen.

8.1 Motivation

Einige der gemessenen Tagesgänge des aktinischen Flusses während der BERLIOZ-Messkampagne zeigten starke zeitliche Schwankungen. Diese Schwankungen machten sich auch in den Tagesgängen von $J(\text{NO}_2)$ (vgl. Abb. 7.9) bemerkbar.

Verursacht sind diese Schwankungen durch die beiden unterschiedlichen Effekte, welche Wolken auf den Strahlungshaushalt ausüben: Zum einen reduzieren Wolken den aktinischen Fluss und damit auch die Photodissoziationsfrequenz unterhalb der Wolke im Vergleich zu wolkenloser Atmosphäre durch den Schattenwurf der Wolke. Andererseits aber kann bei partieller Bewölkung der aktinische Fluss auch größer sein als im wolkenfreien Fall. Eine solche Überhöhung konnte am 6.8.1998 gegen 11 UTC gemessen werden.

Zur Simulation der Wolkeneffekte und Abschätzung der Schwankungen mit dem Strahlungstransportmodell wurde eine durchbrochene Bewölkung mit dem 3-dimensionalen Strahlungstransportmodell SHDOM untersucht. Dadurch konnten die horizontal inhomogenen Eigenschaften der Atmosphäre berücksichtigt werden.

Zur Simulation des Tagesganges von $J(\text{NO}_2)$ bei durchbrochener Bewölkung wurde die Bewegung der Wolken über das Messgerät in der Simulation durch eine räumliche Dimension identifiziert. Die Bewegungsrichtung der Wolke verläuft damit im Modellgebiet in x-Richtung. Dadurch ergab sich ein 2-dimensionales Simulationsgitter. Für die dritte Dimension in y-Richtung wurde horizontale Homogenität angenommen. Diese Einschränkung ist zulässig, da diese Untersuchung lediglich qualitative Aussagen über die Schwankungsbreite von $J(\text{NO}_2)$ unter dem Einfluss durchbrochener Bewölkung anstrebt.

Durch die Identifikation der x-Ausdehnung mit der Zeit kann die vorüberziehende Wolke simuliert und mit Messungen des aktinischen Flusses und den daraus abgeleiteten Photodissoziationsfrequenzen von NO_2 auf dem Dach der Charité verglichen werden.

8.2 Die Modelleingabe

Die zur Bestimmung der Rayleigh-Streuung und Ozonabsorption benötigten Molekülanzahlen der Luft- bzw. Ozonmoleküle wurden analog zu Abschnitt 7.1 abgeleitet. Diese Eigenschaften wurden als horizontal homogen über das Modellgebiet angenommen. Die Aerosolbelastung der Atmosphäre wurde bei dieser Untersuchung

vernachlässigt. Eine zusätzliche Simulation untersucht den Einfluss von urbanem Aerosol, wobei für den Aerosolgehalt Literaturwerte verwendet wurden.

Außerdem wurde eine Wolke simuliert. Aus LIDAR-Messungen von *Immler* (pers. Mitteilung, 1998), welche ebenfalls auf dem Dach der Charité durchgeführt wurden, konnte die vertikale Ausdehnung und Position der Wolke von 1500 m bis 2000 m Höhe abgeleitet werden. Zur Bestimmung der Wolkentropfenverteilung in Gl. (2.26) wurde für den Flüssigwassergehalt Q_l der adiabatische Flüssigwassergehalt Q_{ad} über Gl. (4.9) bestimmt. Diese Berechnung ergab einen Flüssigwassergehalt von 0.09 gm^{-3} am Wolkenunterrand und 0.89 gm^{-3} am Wolkenoberrand. Die außerdem zur Bestimmung der Wolkentropfengrößenverteilung in Gl. (2.26) benötigten effektiven Radien und Standardabweichungen wurden über die Angaben in Tab. 2.3 interpoliert. Die horizontale Ausdehnung der Wolke betrug 350 m. Unterschiedliche Bedeckungsgrade wurden durch die Variation des Abstandes zweier Wolken realisiert.

Die horizontale Diskretisierung des Simulationsgebietes erfolgte mit einer Gitterweite von 50 m. Für die vertikale Diskretisierung bis zum Unterrand der Wolke in 1.5 km Höhe wurde ein Gitterabstand von 100 m verwendet. Innerhalb der Wolke von 1.5 km bis 2 km Höhe wurde der Gitterabstand auf 50 m verfeinert. Wegen der linearen Interpolation der optischen Eigenschaften im Strahlungstransportmodell SHDOM (vgl. Abschnitt 3.2) wurden zur präzisen Definition der oberen und unteren Wolkenbegrenzung zusätzliche Schichten am Wolkenoberrand und am Wolkenunterrand mit einer vertikalen Ausdehnung von 0.1 m eingefügt. Oberhalb der Wolke wird die Auflösung grober und reicht bis in eine Höhe von 60 km.

Das Modell wurde mit 8 Strömen in ϑ -Richtung und 16 Strömen in φ -Richtung gerechnet. Das Abbruchkriterium für die Iteration der Strahldichte lag bei 10^{-3} . Die seitlichen Randbedingungen waren periodisch, so dass sich die im Modellgebiet diskretisierte Wolke in horizontaler Richtung unendlich oft wiederholt und somit eine realistische durchbrochene Bewölkung simuliert werden kann.

Der extraterrestrische Fluss entspricht bis zu einer Wellenlänge von $\lambda = 400 \text{ nm}$ dem Atlas-2-Spektrum aus *Woods et al.* (1996). Für Wellenlängen $\lambda > 400 \text{ nm}$ wurden die Angaben aus dem *WMO-Report* (1986) eingesetzt. Der Absorptionsquerschnitt von Ozon wurde *Daumont et al.* (1992) und der von NO_2 *Mérienne et al.* (1995) entnommen. Die Quantenausbeute $\phi_{\text{NO}+\text{O}}$ stammt aus *DeMore et al.* (1997). Die Wellenlängenaufösung entsprach der in Tab. 4.2 angegebenen.

Die Rechnungen wurden auf dem Parallelrechner HP-Convex SPP2000 des Zentrums für Datenverarbeitung der Universität Mainz durchgeführt. Für jede der dargestell-

ten Simulationen wurden 8 Prozessoren mit jeweils 246 MB Hauptspeicher belastet. Dieser Speicherplatzbedarf wurde nicht allein durch das definierte 2-dimensionale Modellgebiet eingenommen, sondern enthielt zusätzliche freie Speicherkapazitäten, welche durch das adaptive Gitter eingenommen werden konnten. Die gesamte CPU-Zeit einer Simulation betrug 6:26 Stunden bei großem Sonnenzenitwinkel und 1:41 Stunden bei kleinem Sonnenzenitwinkel. Durch die Parallelisierung ergab sich bei Verwendung von 8 Prozessoren eine effektive Rechenzeit von 1:23 Stunden bzw. 0:43 Stunden. Aus diesen Zeitangaben kann leider nicht die Effektivität der Parallelisierung abgeleitet werden, da die effektive Rechenzeit auch die Wartezeit auf externe Prozesse beinhaltet. Je nach Auslastung des Rechners ist diese höher oder niedriger. Die effektive Rechenzeit ist lediglich als Richtwert zu verstehen.

8.3 Das 2-dimensionale $J(\text{NO}_2)$ -Feld

Abb. 8.1 zeigt das aus der Simulation resultierende $J(\text{NO}_2)$ -Feld bei einer Bedeckung $B_w = 25\%$ am 6.8.1998 um 11 UTC in Berlin, was einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 36^\circ$ entspricht. Der Bedeckungsgrad von 25% wurde dadurch realisiert, dass der Abstand zwischen zwei Wolken 1050 m betrug. Unter Kenntnis der Bewegungsgeschwindigkeit der Wolke können die in Metern angegebenen Werte an der Abszisse in Zeiteinheiten umgerechnet werden.

Das dargestellte $J(\text{NO}_2)$ -Feld ist maßgebend durch den Sonnenzenitwinkel und die Wolke beeinflusst. Am Oberrand der Wolke und am Wolkenrand, welcher der Sonne zugewandt ist, ist $J(\text{NO}_2)$ durch die Reflektion am Wolkenrand im Vergleich zur Umgebung deutlich erhöht. Das maximale $J(\text{NO}_2)$ beträgt dort $J_{\max} = 20.7 \cdot 10^{-3} \text{s}^{-1}$. Das minimale $J(\text{NO}_2)$ befindet sich durch die Abschattung am Unterrand der Wolke und beträgt $J_{\min} = 4.4 \cdot 10^{-3} \text{s}^{-1}$. Deutlich erkennbar ist auch der Schattenwurf der Wolke schräg unterhalb der Wolke entsprechend dem Sonnenzenitwinkel. Im Schatten der Wolke verschwindet der direkte Anteil der Strahlung, da die Extinktion innerhalb der Wolke sehr hoch ist. In der Wolkenlücke dagegen kann direkte Strahlung bis an den Boden vordringen. Aus diesem Grund sind die Differenzen von $J(\text{NO}_2)$ zwischen den abgeschatteten und nicht abgeschatteten Gebieten sehr groß.

Abb. 8.2 zeigt die prozentuale Abweichung des in Abb. 8.1 gezeigten $J(\text{NO}_2)$ -Feldes mit $B_w = 25\%$ zum horizontal homogenen $J(\text{NO}_2)$ -Feld einer Simulation ohne Wolkeneinfluss. Es wird deutlich, dass die maximale Erhöhung von $J(\text{NO}_2)$ unter Wol-

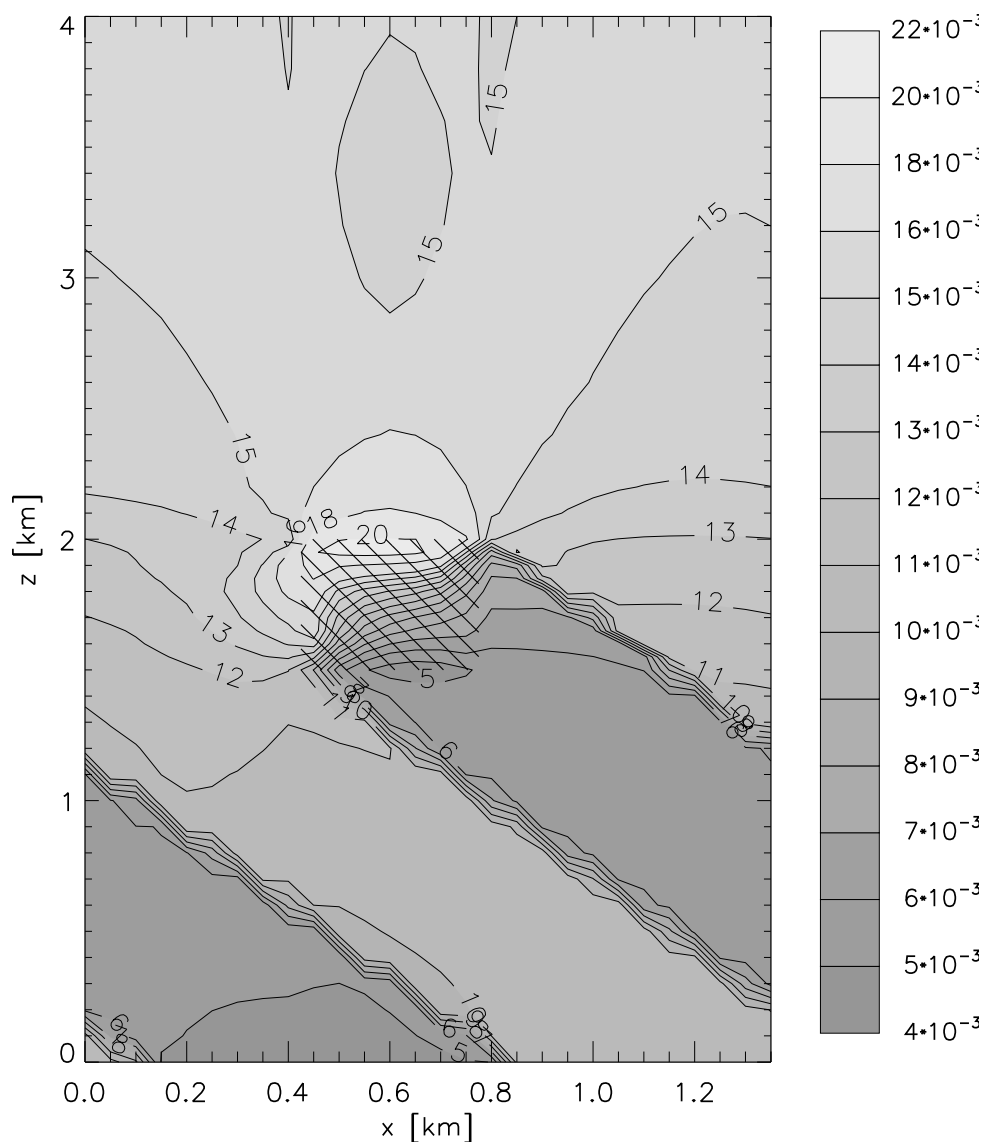


Abbildung 8.1: 2-dimensionales $J(\text{NO}_2)$ -Feld bei einer Bedeckung von 25% und einem Sonnenzenitwinkel von 36° .

keneinfluss im Vergleich zum unbewölkten Strahlungsfeld am Oberrand der Wolke auf der zur Sonne gerichteten Seite stattfindet. Die maximale Erhöhung beträgt dort 95%. Die maximale Verringerung von $J(\text{NO}_2)$ tritt am Unterrand der Wolke auf und beträgt 58%. Wiederum ist der Bereich der Abschattung schräg unterhalb der Wolke deutlich erkennbar.

In den Lücken zwischen den Wolken jedoch ist $J(\text{NO}_2)$ der bewölkten Atmosphäre im Vergleich zur unbewölkten deutlich erhöht. Dies ist eine Folge der Interaktion

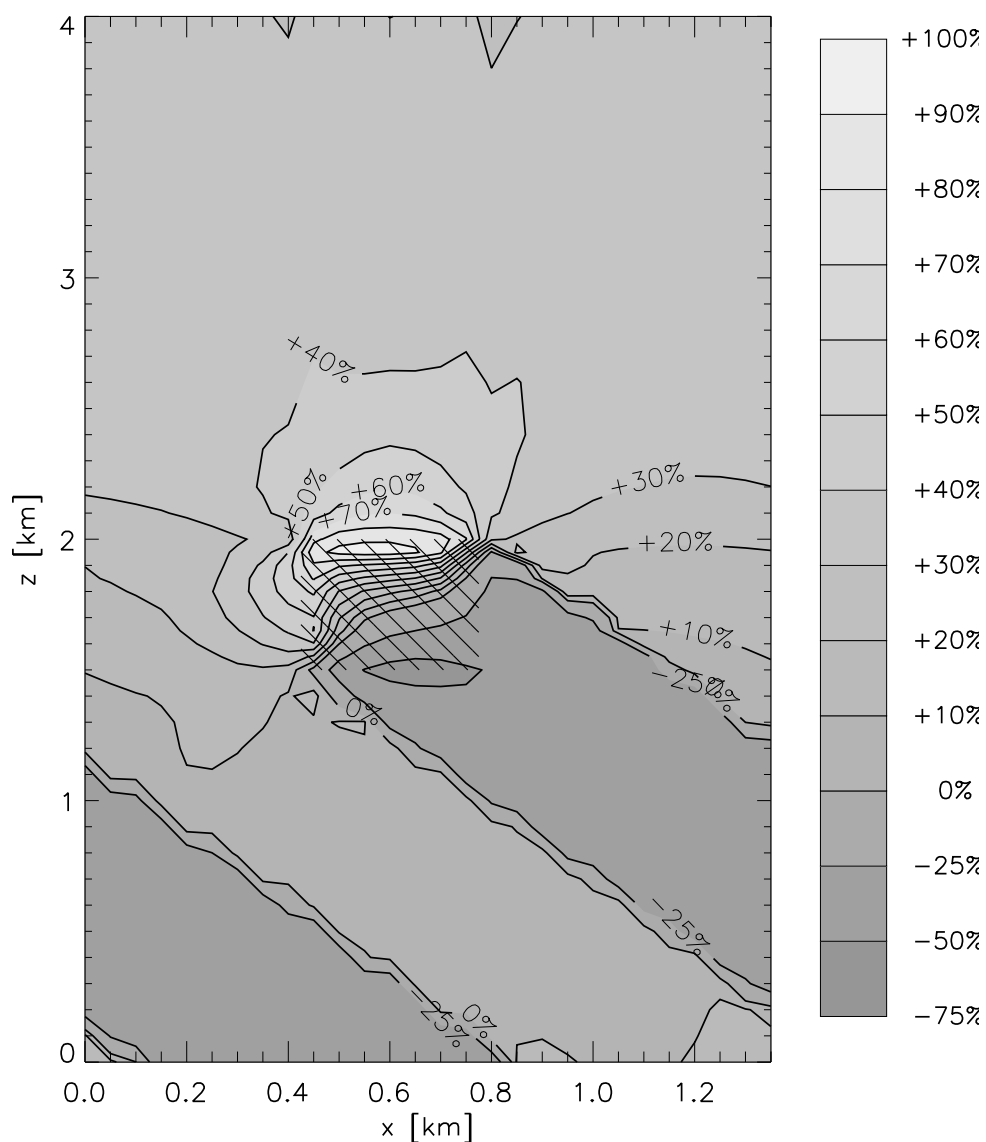


Abbildung 8.2: Prozentuale Abweichung $\Delta J(\text{NO}_2)$ des $J(\text{NO}_2)$ -Feldes bei 25% Bedeckung zum $J(\text{NO}_2)$ -Feld einer wolkenfreien Atmosphäre.

zwischen benachbarten Wolken und des Effekts am seitlichen Wolkenrand. Damit treten im bewölkten Fall zwischen den abgeschatteten Regionen am Boden Erhöhungen des aktinischen Flusses im Vergleich zur unbewölkten Atmosphäre von +14% auf. In den Schattengebieten dagegen wird $J(\text{NO}_2)$ um 50% reduziert.

8.4 Das 2-dimensionale $J(\text{NO}_2)$ -Feld mit offenen Randbedingungen

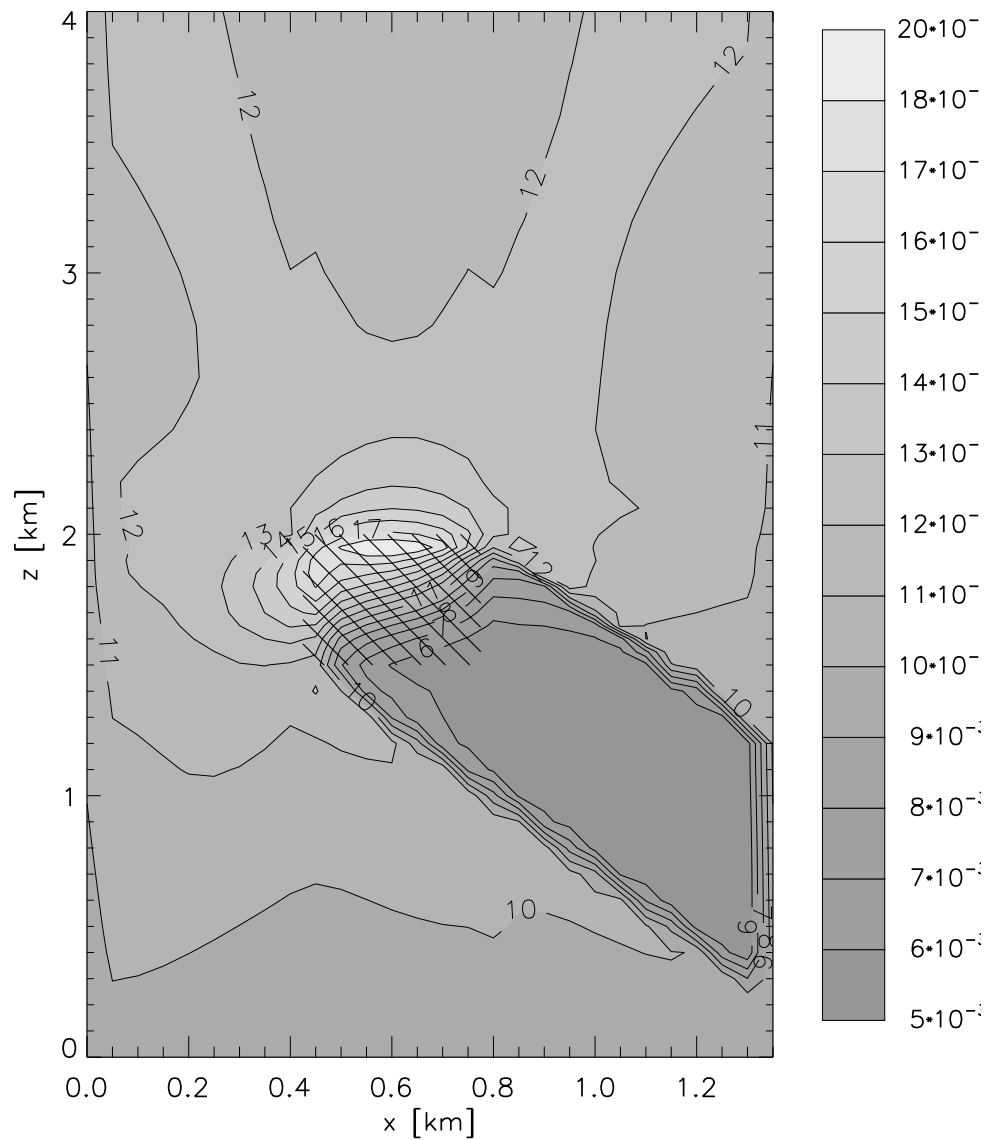


Abbildung 8.3: 2-dimensionales $J(\text{NO}_2)$ -Feld bei einer Bedeckung von 25% und einem Sonnenzenitwinkel von 36° mit offenen Randbedingungen.

Abb. 8.3 enthält das 2-dimensionale $J(\text{NO}_2)$ -Feld, für welches in der Simulation offene Randbedingungen angenommen wurden. In dieser Abbildung zeigt sich die Problematik der offenen Randbedingungen deutlich.

Bei der Verwendung der offenen Randbedingungen werden die erste und letzte Säule

des Modellgebietes, entsprechend den Erläuterungen in Abschnitt 3.2, als „Independent Pixel Simulationen“ (IPS) gerechnet. Im dargestellten Fall nehmen die IPS an den Rändern des Modellgebietes wolkenfreie Bedingungen an. Da der Einfluss der Wolke im dargestellten Modellgebiet bis zu den Randwerten nicht abgeklungen ist, ist die Abweichung zu den jeweils benachbarten Säulen im Modellgebiet sehr groß. Aus diesem Grund ist nicht eindeutig erkennbar, welchen Einfluss die Wolke auf das $J(\text{NO}_2)$ -Feld hat und welcher Einfluss von den Randbedingungen ausgeht. Daher sind die Effekte in Abb. 8.3 physikalisch nicht interpretierbar.

Zur Vermeidung dieser großen Abweichungen müsste das Modellgebiet so weit vergrößert werden, dass die Auswirkungen der Wolke bis zum Rand abgeklungen wären. Im dargestellten Fall müsste das Modellgebiet etwa verdreifacht werden um diesen Effekt zu erreichen.

Allgemein führt die Verwendung von offenen Randbedingungen im Strahlungstransportmodell SHDOM wegen des notwendigen größeren Modellgebietes zu höherem Speicherplatzbedarf und einer längeren Rechenzeit. Bei der Simulation von 3-dimensionalen Modellgebieten werden dadurch sehr schnell die Grenzen der Hauptspeicherkapazität von modernen Hochleistungscomputern erreicht. Ein Modellgebiet von $28 \times 28 \times 75$ Gitterzellen benötigt 185 MB Hauptspeicher. Die Größe dieses Modellgebietes entspricht dem dargestellten 2-dimensionalen Modellgebiet ($28 \times 1 \times 75$), besitzt jedoch eine zusätzliche Ausdehnung in y-Richtung. Bei einer Verdreifachung des Modellgebietes in x- und y-Richtung (d.h. $84 \times 84 \times 75$ Gitterzellen) sind bereits 1.6 GB Hauptspeicher notwendig. In beiden Beispielen berücksichtigt der angegebene Speicherplatzbedarf jedoch noch nicht die notwendigen freien Speicherkapazitäten, welche vom adaptiven Gitter verwendet werden können. Um diese Möglichkeit zuzulassen muss der Speicherplatz noch etwa um den Faktor 1.5 größer sein.

8.5 Das 2-dimensionale $J(\text{NO}_2)$ -Feld unter Aerosoleinfluss

In diesem Abschnitt wird der Einfluss des atmosphärischen Aerosol in durchbrochener Bewölkung untersucht.

Abb. 8.4 zeigt die prozentuale Abweichung des $J(\text{NO}_2)$ -Feldes mit urbanem Aerosol zum $J(\text{NO}_2)$ -Feld ohne Aerosol. Der Aerosolgehalt in dieser Simulation entspricht sowohl dem Vertikalprofil, als auch der Aerosolgrößenverteilung und dem Brechungs-

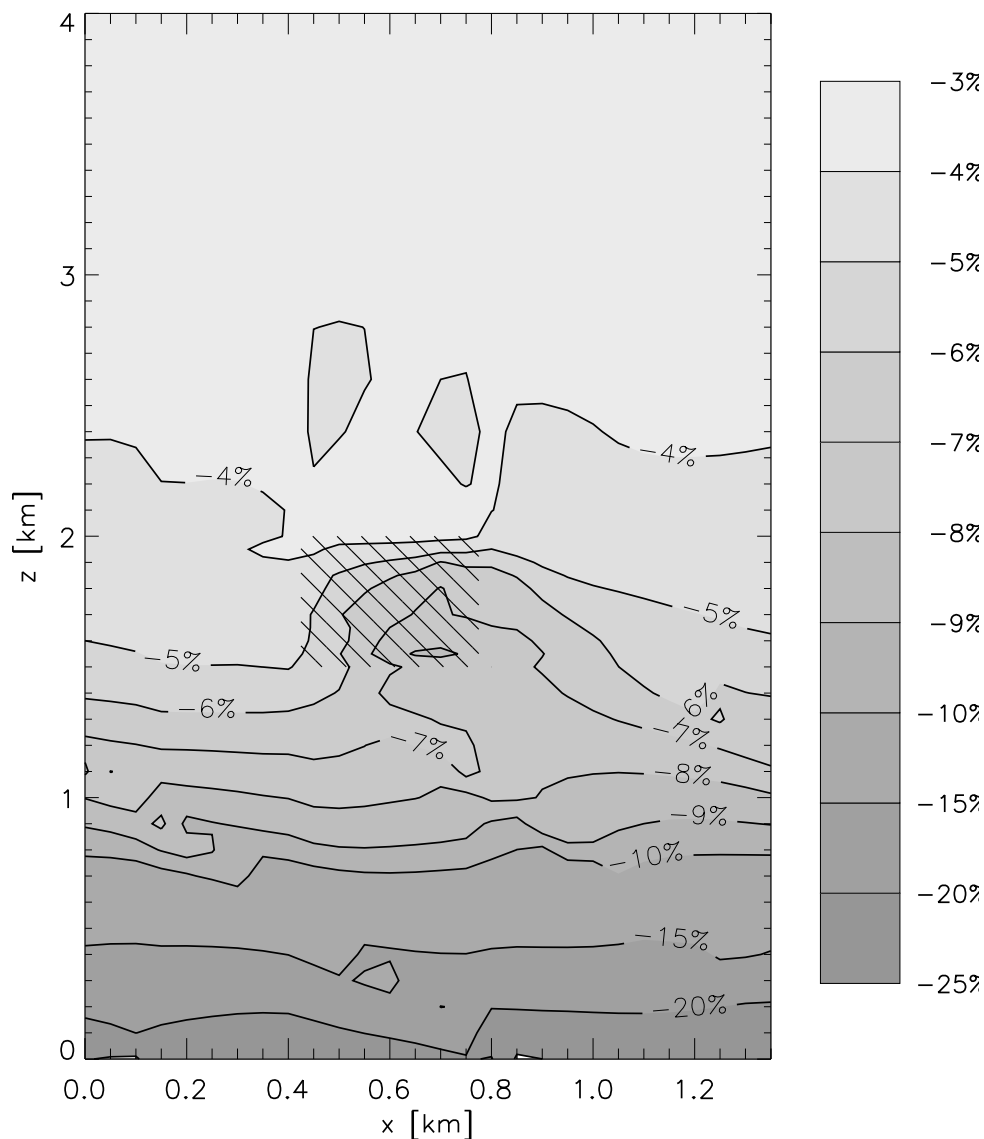


Abbildung 8.4: Prozentuale Abweichung $\Delta J(\text{NO}_2)$ des $J(\text{NO}_2)$ -Feldes bei 25% Bedeckung mit Aerosol zum $J(\text{NO}_2)$ -Feld ohne Aerosol.

index des Aerosolmodells JU aus Abb. 2.3. Die Aerosoleigenschaften wurden im 2-dimensionalen Modellgebiet als horizontal homogen angenommen.

Deutlich erkennbar ist die Abnahme von $J(\text{NO}_2)$ mit zunehmender Eindringtiefe der Strahlung in die Atmosphäre in aerosolbelasteter Atmosphäre im Vergleich zur aerosolfreien Simulation. Wie bei der 1-dimensionalen Simulation verursacht die Anwesenheit von urbanem Aerosol eine Abnahme des aktinischen Flusses über die gesamte Höhe der Atmosphäre. Die maximale Abnahme von $J(\text{NO}_2)$ findet am Bo-

den mit einem Wert von 25.6% statt.

Trotz des horizontal homogen angenommenen Aerosolgehaltes in der Simulation sind die Auswirkungen des Aerosols auf das $J(\text{NO}_2)$ -Feld horizontal inhomogen. Besonders im Schatten direkt unterhalb der Wolke ist die Verminderung von $J(\text{NO}_2)$ größer als in der Umgebung. Verfolgt man beispielsweise die -7%-Isolinie, so verläuft diese am Rand des Modellgebietes in 1.1 km bis 1.3 km Höhe. Bei Eintritt in den Schatten der Wolke (vgl. Abb. 8.1) nimmt die Höhe dieser -7%-Isolinie zu und erreicht eine maximale Höhe von 1.8 km. Das hohe Absorptionsvermögen des urbanen Aerosols reduziert die Strahlung unterhalb der Wolke und intensiviert somit den Schatten der Wolke.

8.6 Vergleich 2-dimensionaler Simulationen zu „Independent Pixel Simulationen“

2- oder 3-dimensionale Strahlungstransportmodelle berücksichtigen die Auswirkungen benachbarter Gitterzellen. Deutlich erkennbar ist dies in Abb 8.1. Damit unterliegen nicht nur die Gitterzellen direkt unterhalb der Wolke dem Wolkeneinfluss, sondern auch die Gitterzellen, die im Schatten der Wolke abhängig vom Sonnenzenitwinkel liegen.

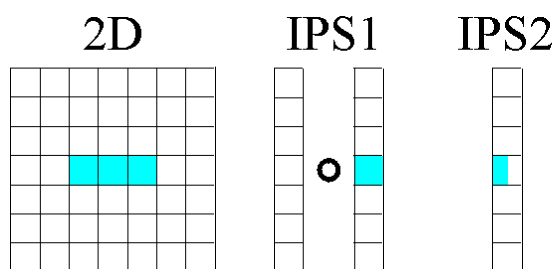


Abbildung 8.5: Skizze zur Beschreibung der 2D-, IPS1- und IPS2-Konfigurationen.

Die linke Abb. 8.5 skizziert ein 2-dimensionales Gitter. Die Flächen zwischen den einzelnen Gitterzellen deuten an, dass diese Zellen einen Einfluss aufeinander haben. Im Gegensatz dazu sind die 1-dimensionalen Simulationen oder die „Independent Pixel Simulationen (IPS)“ zu sehen. Dabei werden die Strahlungseigenschaften jeder

einzelnen Vertikalsäule unabhängig von äußeren Einflüssen getrennt berechnet. Zwei solcher IPS-Methoden sind in der Abb. 8.5 skizziert. Zum einen eine Methode, bei der die IPS-Modellergebnisse von 0% und 100% Bewölkung mit dem vorliegenden Bedeckungsgrad B_w gewichtet werden. Diese Methode wird im Folgenden mit *IPS1* bezeichnet und ist durch die mittlere Abb. 8.5 graphisch dargestellt. Bei einer weiteren Methode wird der Flüssigwassergehalt der Wolke mit B_w skaliert, so dass der Flüssigwassergehalt in der Simulation reduziert wird. Diese Methode wird im Folgenden mit *IPS2* bezeichnet und ist im rechten Teil der Abb. 8.5 dargestellt. Beide Methoden dienen der Approximation des Strahlungsfeldes bei durchbrochener Bewölkung mit 1-dimensionalen Strahlungstransportrechnungen.

Die Ergebnisse dieser Approximationen *IPS1* und *IPS2* sollen im Folgenden mit Ergebnissen der 2-dimensionalen Simulation, welche mit *2D* bezeichnet wird, verglichen werden. Dazu wurde das mittlere $J(\text{NO}_2)$ einer Vertikalschicht bestimmt. Durchgeführt wurde dieser Vergleich in zwei Höhen: Zum einen in Bodennähe und zum anderen oberhalb der Wolke. Die Untersuchung in Bodennähe ist für den Vergleich mit den Messungen des SRM interessant. Die Untersuchung oberhalb der Wolken liefert wichtige Informationen zur Interpretation von Satellitenmessungen.

Vergleich 2D zu IPS am Boden

| B_w , % | <i>2D</i> , 10^{-3}s^{-1} | <i>IPS1</i> , 10^{-3}s^{-1} | Abweichung zu <i>2D</i> , % | <i>IPS2</i> , 10^{-3}s^{-1} | Abweichung zu <i>2D</i> , % |
|-----------|---------------------------------------|---|--------------------------------|---|--------------------------------|
| 0 | | 4.90 | | | |
| 10 | 3.89 | 4.47 | +14.91 | 1.92 | -50.72 |
| 25 | 2.37 | 3.81 | +61.01 | 1.35 | -42.92 |
| 35 | 1.84 | 3.37 | +83.39 | 1.14 | -38.29 |
| 50 | 1.34 | 2.72 | +102.30 | 0.89 | -33.46 |
| 70 | 0.88 | 1.85 | +109.49 | 0.71 | -19.96 |
| 100 | | 0.54 | | | |

Tabelle 8.1: *2D*- $J(\text{NO}_2)$ in Bodennähe für 6 UTC ($\vartheta_0 = 69^\circ$) im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus *IPS1* und *IPS2*.

Tab. 8.1 enthält das horizontal gemittelte F_{act} in Bodennähe der Simulation *2D* um 6 UTC mit $\vartheta_0 = 69^\circ$ im Vergleich zu den Ergebnissen des *IPS1* und *IPS2* für $B_w = 0\%$, 10%, 25%, 35%, 50%, 70% und 100%.

Diese Gegenüberstellung zeigt, dass die Abweichungen der *IPSI*- zu den *2D*-Ergebnissen mit zunehmendem B_w stark anwachsen. Die *IPSI*-Methode überschätzt das $J(\text{NO}_2)$ deutlich.

Die Ursache hierfür liegt darin, dass bei der *IPSI*-Methode unabhängig von B_w immer ein Teil der am Boden ankommenden Strahlung von der Wolke unbeeinflusst ist. Bei der *2D*-Simulation dagegen ist die Fläche A_d unterhalb der Wolke, auf welcher direkte Strahlung ankommt, von der Wolkenhöhe z_c , der Lücke zwischen den Wolken x_g und dem Sonnenzenitwinkel ϑ_0 abhängig und nicht ausschließlich von x_g bzw. B_w wie bei der *IPSI*-Methode. Dadurch kann es zu Situationen kommen, bei welchen auch bei $B_w < 100\%$ keine direkte Strahlung mehr am Boden ankommt.

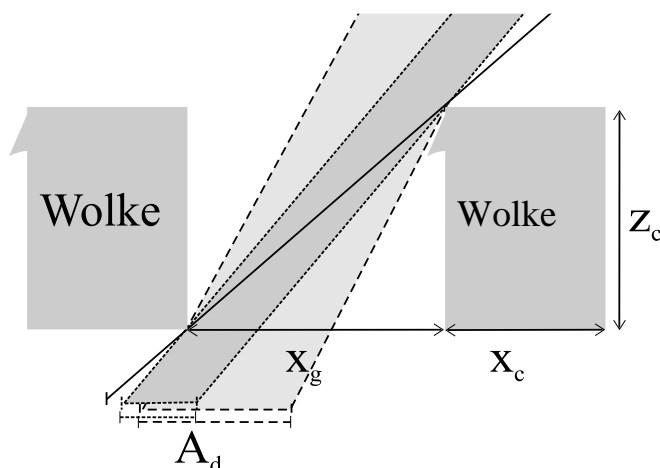


Abbildung 8.6: Skizze zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen Wolkenhöhe z_c , horizontaler Wolkenausdehnung x_c , Wolkenlücke x_g , Sonnenzenitwinkel ϑ_0 und Fläche A_d unterhalb der Wolke, auf welcher direkte Strahlung auftrifft.

Abb. 8.6 stellt den Zusammenhang zwischen z_c , x_g , der horizontalen Ausdehnung der Wolke x_c , ϑ_0 und A_d graphisch dar.

Die durch die Wolke abgeschattete Fläche A_s (skizziert in Abb. 8.7) lässt sich im 2-dimensionalen Raum aus geometrischen Überlegungen für $A_s \leq x_c + x_g$ bestimmen:

$$A_s = z_c \tan \vartheta_0 + x_c. \quad (8.1)$$

Damit ist die abgeschattete Fläche unter der Wolke in *2D* um den Faktor

$$f = z_c/x_c \tan \vartheta_0 + 1 \quad (8.2)$$

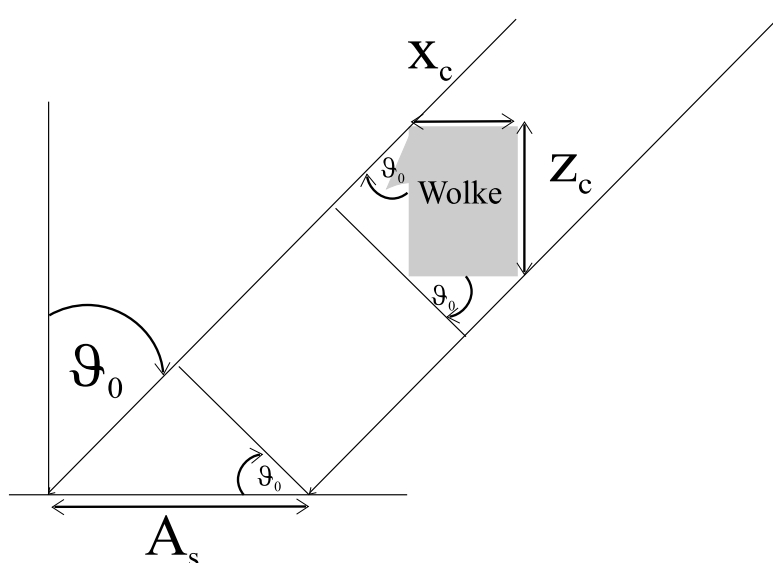


Abbildung 8.7: Skizze zur Darstellung der abgeschatteten Fläche A_s .

größer als in *IPS1*. Im dargestellten Fall mit $\vartheta_0 = 69^\circ$, $z_c = 500$ m und $x_c = 350$ m ist das abgeschattete Gebiet unterhalb der Wolke in *2D* um den Faktor $f = 4.8$ größer als in *IPS1*. Aus diesem Grund ist das am Boden gemittelte $J(\text{NO}_2)$ der *2D*-Simulation geringer als der *IPS1*-Wert.

Die Abweichungen der *IPS2*- zu den *2D*-Ergebnissen dagegen nehmen mit zunehmendem B_w ab. Bei dieser Methode wird der Wert von $J(\text{NO}_2)$ systematisch unterschätzt. Da bei der *IPS2*-Methode lediglich der Flüssigwassergehalt der Wolke reduziert wird, ist $J(\text{NO}_2)$ unterhalb der Wolke horizontal homogen. Bei der *IPS2*-Methode kommt im Gegensatz zur *2D*-Methode auch bei geringen Bedeckungsgraden keine direkte Strahlung am Boden an. Aus diesem Grund sind die aus der *IPS2*-Methode resultierenden $J(\text{NO}_2)$ kleiner als die aus dem *2D* resultierenden $J(\text{NO}_2)$.

Tab. 8.2 enthält die Ergebnisse der Untersuchung für einen Sonnenzenitwinkel von 36° . Die Abweichungen von $J(\text{NO}_2)$ der *IPS1*-Simulation zu den Ergebnissen der *2D*-Simulation sind bei $\vartheta_0 = 36^\circ$ geringer als bei größerem Sonnenzenitwinkel. Bei $B_w \leq 35\%$ sind die Abweichungen kleiner 5%. Bei $B_w > 35\%$ überschätzt die *IPS1*-Methode $J(\text{NO}_2)$ im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus *2D*. Die Unterschätzung von $J(\text{NO}_2)$

| $B_w, \%$ | $2D,$ 10^{-3}s^{-1} | $IPS1,$ 10^{-3}s^{-1} | Abweichung zu $2D, \%$ | $IPS2,$ 10^{-3}s^{-1} | Abweichung zu $2D, \%$ |
|-----------|---------------------------------|-----------------------------------|---------------------------|-----------------------------------|---------------------------|
| 0 | | 9.20 | | | |
| 10 | 8.73 | 8.46 | -3.06 | 6.82 | -21.82 |
| 25 | 7.47 | 7.35 | -1.70 | 4.37 | -41.58 |
| 35 | 6.48 | 6.60 | +1.84 | 3.69 | -43.08 |
| 50 | 4.93 | 5.49 | +11.38 | 2.95 | -40.03 |
| 70 | 2.90 | 4.00 | +37.90 | 2.33 | -19.76 |
| 100 | | 1.78 | | | |

Tabelle 8.2: $2D$ - $J(\text{NO}_2)$ in Bodennähe für 11 UTC ($\vartheta_0 = 36^\circ$) im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus $IPS1$ und $IPS2$.

aus $IPS2$ im Vergleich zum $J(\text{NO}_2)$ aus $2D$ ist ebenfalls geringer als bei größerem Sonnenzenitwinkel.

Vergleich 2D zu IPS oberhalb der Wolken

Im Folgenden werden die Abweichungen der approximativen Methoden $IPS1$ und $IPS2$ zu $2D$ oberhalb der Wolken diskutiert.

| $B_w, \%$ | $2D,$ 10^{-3}s^{-1} | $IPS1,$ 10^{-3}s^{-1} | Abweichung zu $2D, \%$ | $IPS2,$ 10^{-3}s^{-1} | Abweichung zu $2D, \%$ |
|-----------|---------------------------------|-----------------------------------|---------------------------|-----------------------------------|---------------------------|
| 0 | | 6.28 | | | |
| 10 | 7.16 | 6.78 | -5.36 | 9.08 | +26.78 |
| 25 | 8.38 | 7.51 | -10.33 | 10.09 | +20.38 |
| 35 | 8.91 | 8.01 | -10.14 | 10.41 | +16.82 |
| 50 | 9.55 | 8.74 | -8.48 | 10.71 | +12.15 |
| 70 | 10.48 | 9.73 | -7.18 | 10.98 | +4.80 |
| 100 | | 11.20 | | | |

Tabelle 8.3: $2D$ - $J(\text{NO}_2)$ in 2 km Höhe für 6 UTC ($\vartheta_0 = 69^\circ$) im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus $IPS1$ und $IPS2$.

Tab. 8.3 enthält $J(\text{NO}_2)$ und $\Delta J(\text{NO}_2)$ oberhalb der Wolken in 2 km Höhe für $\vartheta_0 = 69^\circ$. Die Abweichung in dieser Höhe ist geringer als am Boden. Der Abschattungseffekt durch die Wolke entfällt. Ausschlaggebend ist hier die unterschiedliche Reflektion der Strahlung am Wolkenoberrand bei den verschiedenen Verfahren.

Die *IPS1*-Methode unterschätzt $J(\text{NO}_2)$ der *2D*-Simulation. Im Gegensatz zur *IPS1*-Methode berücksichtigt die *2D*-Methode die Effekte an den seitlichen Rändern der Wolke. Diese führen zu einer Erhöhung des diffusen Anteils der Strahlung. Diese Erhöhung auf Grund des Effektes an den seitlichen Wolkenrändern wird von der *IPS1*-Methode nicht berücksichtigt. Dadurch ist $J(\text{NO}_2)$ der *IPS1*-Simulation geringer als das der *2D*-Simulation.

Die *IPS2*-Methode überschätzt $J(\text{NO}_2)$ der *2D*-Simulation, obwohl der geringere Flüssigwassergehalt der Wolke bei der *IPS2*-Methode im Vergleich zum Flüssigwassergehalt der Wolke in der *2D*-Simulation zu einer Verringerung des Maximums von $J(\text{NO}_2)$ führt (*Früh et al.*, 2000a). Ursache hierfür ist die Mittelung bei der *2D*-Simulation auch über Flächen unter denen sich keine Wolke befindet. Das vermindert den Mittelwert der *2D*-Simulation, da dort keine erhöhte Rückstreuung durch die Wolke stattfindet.

| $B_w, \%$ | <i>2D</i> , 10^{-3}s^{-1} | <i>IPS1</i> , 10^{-3}s^{-1} | Abweichung zu <i>2D</i> , % | <i>IPS2</i> , 10^{-3}s^{-1} | Abweichung zu <i>2D</i> , % |
|-----------|---------------------------------------|---|--------------------------------|---|--------------------------------|
| 0 | | 10.66 | | | |
| 10 | 12.35 | 11.91 | -3.55 | 16.45 | +33.21 |
| 25 | 14.86 | 13.80 | -7.18 | 19.82 | +33.31 |
| 35 | 16.44 | 15.05 | -8.46 | 20.80 | +26.47 |
| 50 | 18.68 | 16.94 | -9.35 | 21.79 | +16.61 |
| 70 | 20.99 | 19.45 | -7.35 | 22.57 | +7.54 |
| 100 | | 23.22 | | | |

Tabelle 8.4: $2D$ - $J(\text{NO}_2)$ in 2 km Höhe für 11 UTC ($\vartheta_0 = 36^\circ$) im Vergleich zu $J(\text{NO}_2)$ aus *IPS1* und *IPS2*.

Tab. 8.4 enthält $J(\text{NO}_2)$ und $\Delta J(\text{NO}_2)$ oberhalb der Wolken in 2 km Höhe für $\vartheta_0 = 36^\circ$. $\Delta J(\text{NO}_2)$ ist in dieser Höhe wiederum geringer als am Boden. Die Abweichungen der *IPS1*- und *IPS2*-Methode zu $J(\text{NO}_2)$ aus *2D* entsprechen in etwa denen bei $\vartheta_0 = 69^\circ$.

8.7 Tagesgang von $J(\text{NO}_2)$ bei partieller Bewölkung

Der Tagesgang von $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ am 6.8.1998 (vgl. Abb. 7.9) zeigte starke zeitliche Schwankungen, welche auf häufig wechselnde Bewölkungssituationen zurückschließen ließen. Mit der 2D-Simulation soll nun die gemessene Schwankungsbreite von $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ mit der aus der Simulation resultierenden Schwankungsbreite von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ verglichen werden. Die Schwankungsbreite von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ wird durch die Differenz zwischen dem minimalen $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ und dem maximalen $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ am Boden vorgegeben.

Zur Beschreibung des Tagesganges von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ wurden zwölf Simulationen in aerosolunbelasteter, bewölkter Atmosphäre mit dem Strahlungstransportmodell SHDOM gerechnet. Der Sonnenzenitwinkel wurde dabei so variiert, dass er dem Sonnenstand von 6 UTC bis 17 UTC zu jeder vollen Stunde entsprach. Die meteorologische Situation und die Eigenschaften der Wolke wurden für diese Untersuchung nicht verändert. Detailliert ist die Modelleingabe bereits in Abschnitt 8.2 beschrieben.

| Uhrzeit, UTC | $\vartheta_0, ^\circ$ | Uhrzeit, UTC | $\vartheta_0, ^\circ$ |
|--------------|-----------------------|--------------|-----------------------|
| 6 | 69 | 12 | 40 |
| 7 | 60 | 13 | 41 |
| 8 | 52 | 14 | 48 |
| 9 | 44 | 15 | 57 |
| 10 | 38 | 16 | 66 |
| 11 | 36 | 17 | 75 |

Tabelle 8.5: Sonnenzenitwinkel ϑ_0 für den Tagesgang am 6.8.1998 in Berlin.

Tab. 8.5 enthält die verwendeten Sonnenzenitwinkel ϑ_0 für die verschiedenen Simulationszeiten.

Abb. 8.8 zeigt den aus den Messungen des aktinischen Flusses abgeleiteten Tagesgang von $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ (durchgezogene Linie) zusammen mit den Ergebnissen der 1-dimensionalen Simulationen bei wolkenlosen Verhältnissen bzw. 100% Bedeckung (beides als gepunktete Linien dargestellt). Auf Grund der Abschattung durch die Wolke ist $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ bei 100% Bedeckung stark vermindert. Der Verlauf von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ wird also durch die untere Linie repräsentiert. Die strich-punktierte Linie zeigt den

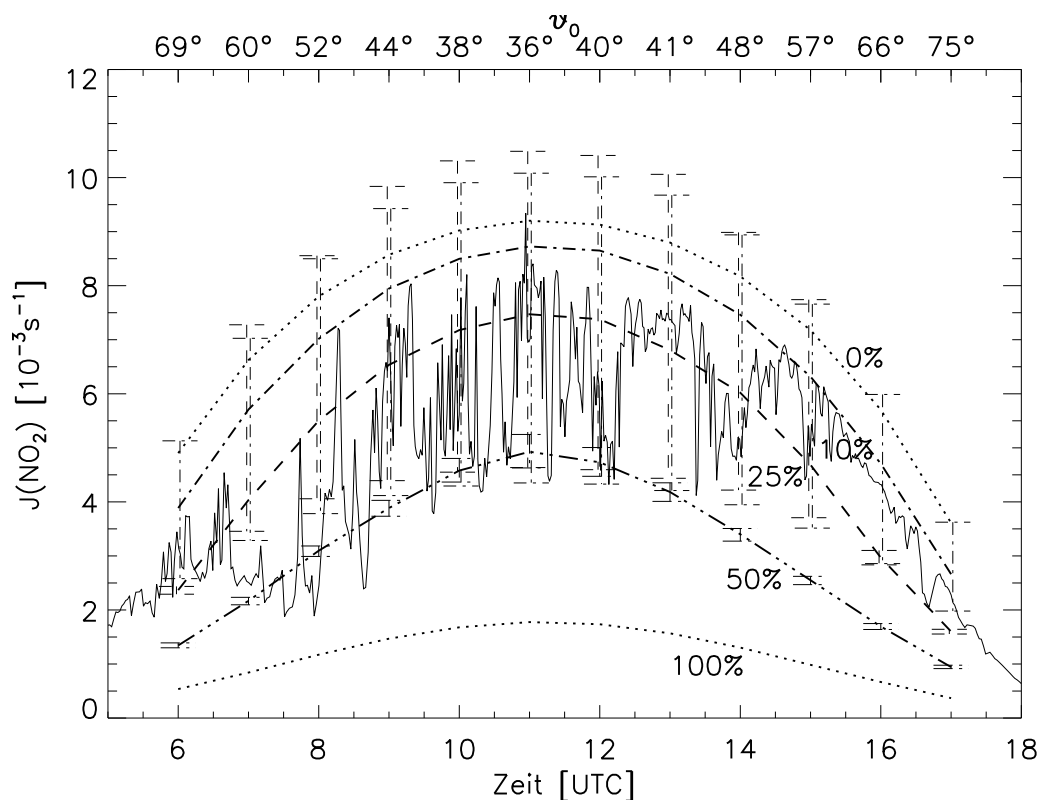


Abbildung 8.8: Tagesgang des gemessenen (durchgezogene Linie) und simulierten $J_S(\text{NO}_2)$ unter Vernachlässigung des atmosphärischen Aerosols am 6.8.1998 für $B_w = 0\%$ und $B_w = 100\%$ (gepunktete Linien), $B_w = 10\%$ (strich-punktiierte Linie), $B_w = 25\%$ (gestrichelte Linie) und $B_w = 50\%$ (strich-dreifach-punktiierte Linie).

mittleren Bodenwert von $J_S(\text{NO}_2)$ aus $2D$ bei einem Bedeckungsgrad $B_w = 10\%$. An den Simulationszeitpunkten ist jeweils die Variationsbreite von $J_S(\text{NO}_2)$ durch den vertikalen Balken gekennzeichnet. Dieser verbindet den minimalen J_{\min} mit dem maximalen J_{\max} Bodenwert von $J_S(\text{NO}_2)$ im Modellgebiet, d.h. entlang der Abszisse. Die gestrichelte Linie bezieht sich auf die $2D$ -Simulation bei $B_w = 25\%$ und die strich-dreifach-punktiierte Linie geht auf eine Simulation mit $B_w = 50\%$ zurück.

Zunächst wird deutlich, dass die mittleren Werte am Boden J_{mit} aus den Simulationen mit den unterschiedlichen Bedeckungsgraden alle zwischen den Simulationsergebnissen für 0% und 100% Bedeckung liegen. Auch werden die kleinsten am Boden berechneten Werte für $J_S(\text{NO}_2)$, welche mit J_{\min} bezeichnet werden, jeder Simulation nie kleiner als der Wert für $B_w = 100\%$. Die größten am Boden anzutreffenden Werte J_{\max} können jedoch je nach Bedeckungsgrad die Werte für 0% Bedeckung übertreffen.

Da die in Abb. 8.8 dargestellten simulierten $J_S(\text{NO}_2)$ aus Simulationen unter Vernachlässigung des Aerosolgehaltes resultieren, überschätzten diese den gemessenen Wert von $J_M(\text{NO}_2)$. Aus diesem Grund wurde zusätzlich ein Tagesgang in aerosolbelasteter Atmosphäre gerechnet.

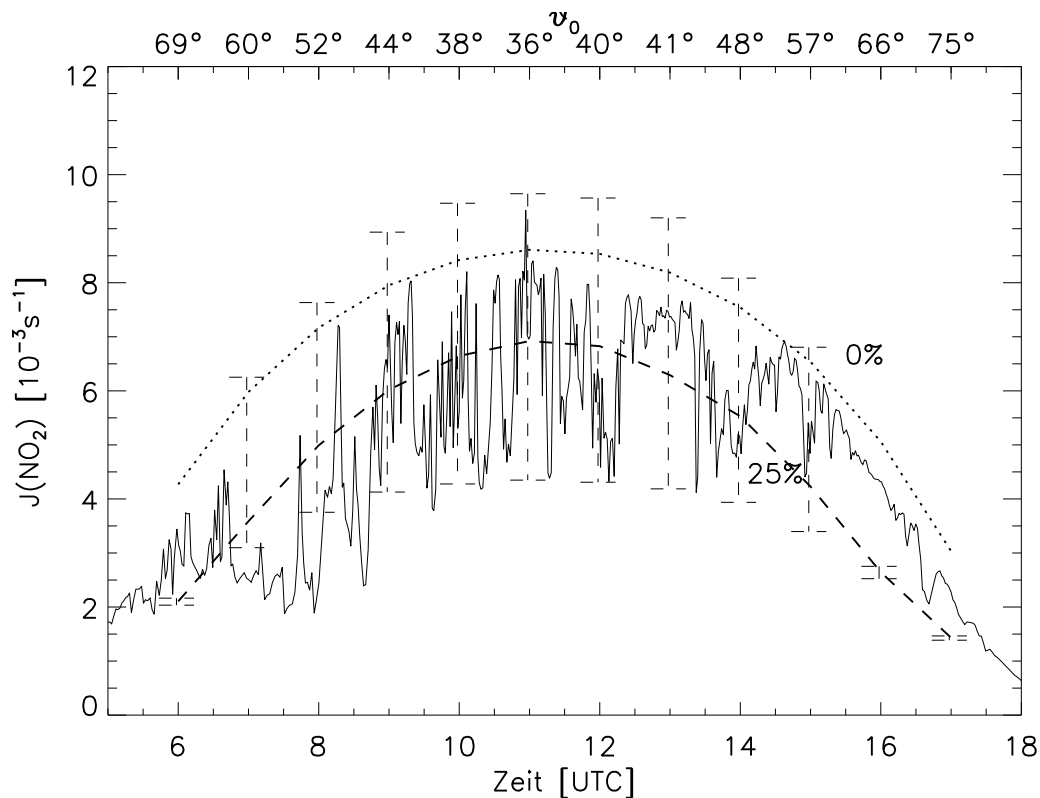


Abbildung 8.9: Tagesgang des gemessenen (durchgezogene Linie) und simulierten $J(\text{NO}_2)$ am 6.8.1998 für $B_w = 0\%$ und $B_w = 25\%$ (gestrichelte Linie) in einer aerosolbelasteten Atmosphäre.

Die beiden in Abb. 8.9 dargestellten Simulationsergebnisse stellen den Tagesgang von $J_S(\text{NO}_2)$ in aerosolbelasteter Atmosphäre dar. Das dabei verwendete Vertikalprofil der Aerosolanzahlkonzentration und die Verteilungsfunktion der Aerosolpartikel basieren auf dem Aerosolmodell JU (vgl. Abschnitt 2.2.1). Um einen für den Aerosolgehalt am 6.8.1998 repräsentativen Wert zu erhalten, wurde die Aerosolanzahlkonzentration aus JU um 20% vermindert. Das führte zu einer Sichtweite von 49 km und einer optischen Dicke des Aerosol von $\tau_{\text{aer}} = 0.06$ bei $\lambda = 550 \text{ nm}$. Die gepunktete Linie repräsentiert $J_S(\text{NO}_2)$ der wolkenfreien Atmosphäre und die gestrichelte Linie J_{mit} bei einem Bedeckungsgrad von $B_w = 25\%$. Die vertikalen Balken beschreiben wiederum die Variationsbreite von $J_S(\text{NO}_2)$ und verbinden J_{min}

mit J_{\max} . Die durchgezogene Linie bezieht sich auf die Messungen von $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$. Der Einfluss des Aerosols bewirkt eine Abnahme von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$. In wolkenfreier Atmosphäre um 11 UTC beträgt diese Reduktion 6.4% im Vergleich zur Simulation unter Vernachlässigung des Aerosols. Bei $B_{\text{w}} = 25\%$ wird das mittlere J_{mit} der Vertikalschicht am Boden durch den Aerosoleinfluss um 7.4% reduziert.

Durch die Reduktion der Aerosolanzahlkonzentration bei dieser Untersuchung im Vergleich zur Sensitivitätsstudie in Abschnitt 8.5 sind auch die Auswirkung des Aerosols am Boden geringer (vgl. Abb. 8.4).

Die prozentualen Abweichungen des minimalen J_{\min} und maximalen J_{\max} zum Mittelwert J_{mit} entsprechen in aerosolbelasteter Atmosphäre näherungsweise den prozentualen Abweichungen in aerosolfreier Atmosphäre. Ein Vergleich mit Abb. 8.4 zeigt, dass die Abweichungen zum aerosolfreien $J(\text{NO}_2)$ -Feld zwar horizontal inhomogen sind, aber diese Inhomogenität nur direkt unterhalb der Wolke existiert. Unterhalb von 1 km Höhe sind bei der verwendeten Wolkenkonfiguration die Abweichungen zum aerosolfreien $J(\text{NO}_2)$ -Feld nahezu horizontal homogen. Das wiederum bedeutet, dass sich die Effekte des Aerosols am Boden in einer einheitlichen Reduktion von J_{\min} , J_{mit} und J_{\max} auswirken, so dass die prozentuale Abweichung nahezu konstant bleiben.

Abb. 8.9 macht deutlich, dass die Schwankungen der gemessenen $J_{\text{M}}(\text{NO}_2)$ innerhalb der simulierten Variationsbreite von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ bei Berücksichtigung des Aerosols und einem Bedeckungsgrad von $B_{\text{w}} = 25\%$ liegen.

8.7.1 Untersuchung der Variationsbreite von $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ bei unterschiedlichen Bedeckungsgraden und Sonnenzenitwinkeln

Abb. 8.10 zeigt die prozentuale Abweichung am Boden des minimalen J_{\min} und maximalen J_{\max} zum Mittelwert J_{mit} in Abhängigkeit vom Sonnenzenitwinkel ϑ_0 . Diese Abweichung stellt die Variationsbreite der simulierten $J_{\text{S}}(\text{NO}_2)$ bei verschiedenen Bedeckungsgraden in Abhängigkeit von ϑ_0 dar. Da sich der prozentuale Unterschied vom minimalen J_{\min} und vom maximalen J_{\max} zum mittleren J_{mit} durch den Einfluss des Aerosols nicht ändert, ist es ausreichend, die Untersuchung bei aerosolfreien Bedingungen durchzuführen.

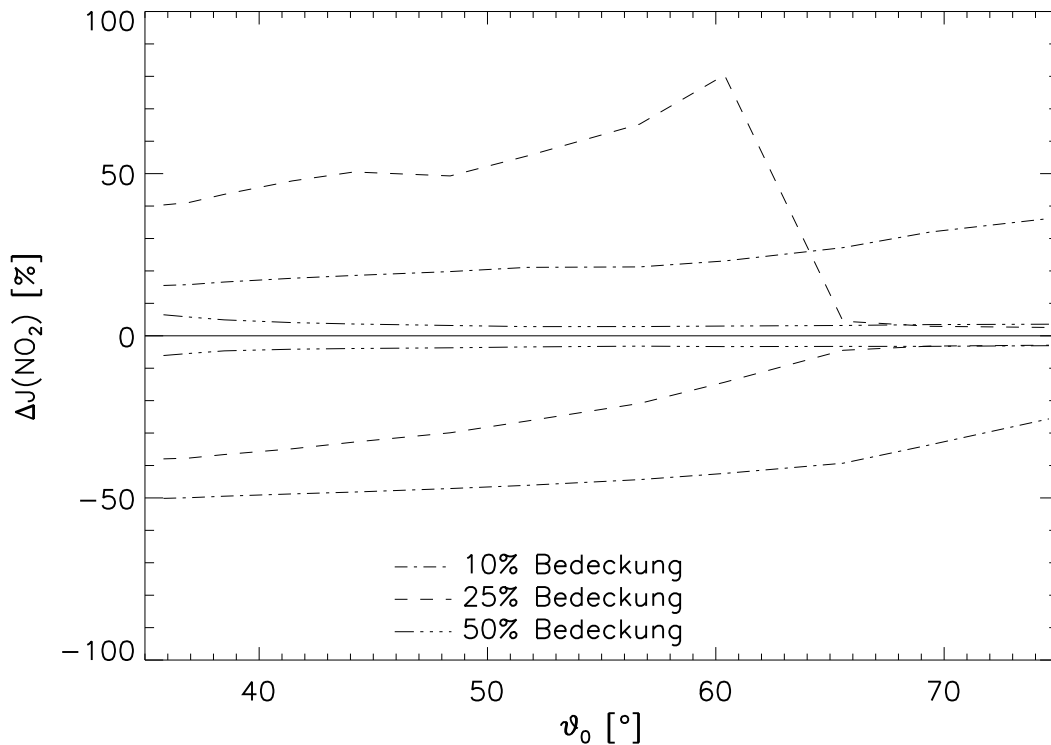


Abbildung 8.10: $\Delta J(\text{NO}_2)$ von J_{\max} und J_{\min} zu J_{mit} in Bodennähe für unterschiedliche Bedeckungsgrade.

10% Bedeckung

Die strich-punktiierte Linie bezieht sich auf die Simulation bei einem Bedeckungsgrad von $B_w = 10\%$. Die Abweichung des maximalen J_{\max} zum mittleren J_{mit} beträgt bei $\vartheta_0 = 36^\circ$ +16% und steigt mit zunehmendem Sonnenzenitwinkel an. Bei $\vartheta_0 = 74^\circ$ ist $\Delta J(\text{NO}_2)$ des maximalen J_{\max} zum mittleren J_{mit} am Boden +36%. Die Abweichung des minimalen J_{\min} zum mittleren J_{mit} ist dagegen bei kleinen Sonnenzenitwinkeln größer als bei großen ϑ_0 . Bei $\vartheta_0 = 36^\circ$ beträgt $\Delta J(\text{NO}_2)$ des minimalen J_{\min} zum mittleren J_{mit} am Boden -50% und bei $\vartheta_0 = 75^\circ$ lediglich noch -26%.

Vergleicht man dazu Abb. 8.6, so erkennt man, dass bei großen Sonnenzenitwinkeln die Fläche A_d sehr klein wird (durchgezogene Linie in Abb. 8.6). Aus diesem Grund ist bei großen Sonnenzenitwinkeln die Mittelwertbildung dominiert von den Werten derjenigen Gitterzellen, in denen die Strahlung durch die Abschattung der Wolke vermindert wurde. Der horizontale Mittelwert J_{mit} wird dadurch relativ klein. Aus diesem Grund wird die Abweichung von J_{\max} zu J_{mit} mit zunehmendem Sonnenze-

nitwinkel größer und die Abweichung von J_{\min} zu J_{mit} mit zunehmendem ϑ_0 kleiner. Bei kleinen Sonnenzenitwinkeln dagegen ist A_d groß (gepunktete Linie in Abb. 8.6). J_{mit} ist also relativ groß und damit ist auch die Abweichung zu J_{\max} klein. Dafür ist aber die Abweichung zu J_{\min} groß.

25% Bedeckung

Die gestrichelte Linie in Abb. 8.10 beschreibt die prozentuale Abweichung von J_{\max} und J_{\min} in der untersten Schicht des Modellgebietes zu J_{mit} bei $B_w = 25\%$. Die Abweichung des maximalen J_{\max} zum mittleren J_{mit} steigt von $+40\%$ bei $\vartheta_0 = 36^\circ$ bis zu $+80\%$ bei $\vartheta_0 = 60^\circ$ an. Überschreitet der Sonnenzenitwinkel 60° , so fällt $\Delta J(\text{NO}_2)$ auf $+3\%$ bei $\vartheta_0 = 66^\circ$ bis $\vartheta_0 = 75^\circ$ ab.

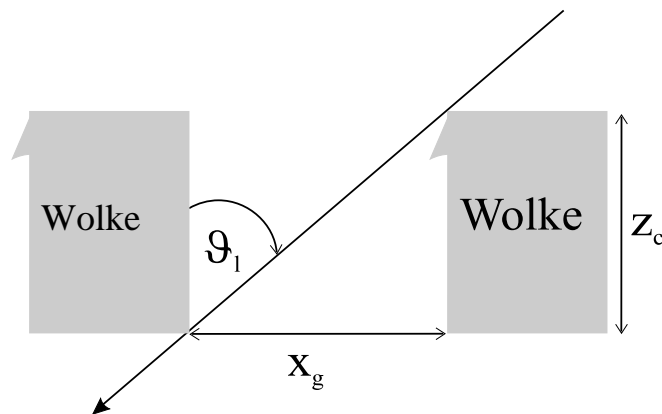


Abbildung 8.11: Maximaler Sonnenzenitwinkel ϑ_1 , bei dem direkte Strahlung den Erdboden erreicht.

Zur Erläuterung dieses Verhaltens betrachte man zunächst den Sonnenzenitwinkel ϑ_1 , welcher in Abb. 8.11 dargestellt ist. Es ist der maximale Sonnenzenitwinkel ϑ_1 , bei dem direkte Strahlung den Erdboden erreicht. Ist $\vartheta_0 < \vartheta_1$ so kann direkte Strahlung den Erdboden erreichen. Ist $\vartheta_0 > \vartheta_1$ so kommt keine direkte Strahlung mehr am Erdboden an.

ϑ_1 lässt sich aus der vertikalen Ausdehnung der Wolke z_c und dem Abstand zwischen zwei Wolken x_g über

$$\tan \vartheta_1 = \frac{x_g}{z_c} \quad (8.3)$$

berechnen. In Tab. 8.6 sind alle ϑ_1 für die in der Simulation verwendete Wolkenkonfiguration und die untersuchten Bedeckungsgrade aufgelistet.

| $B_w, \%$ | $\vartheta_1, ^\circ$ |
|-----------|-----------------------|
| 10 | 81 |
| 25 | 63 |
| 35 | 50 |
| 50 | 31 |
| 70 | 11 |

Tabelle 8.6: Maximaler Sonnenzenitwinkel, bei dem direkte Strahlung den Erdboden erreicht.

Bei der in dieser Simulation verwendeten Wolkenkonfiguration ist für 25% Bedeckung $\vartheta_1 = 63^\circ$. Bei $\vartheta_0 < 63^\circ$ kommt direkte Strahlung am Erdboden an. Die prozentuale Abweichung von J_{\max} zu J_{mit} ist deshalb groß. Bei $\vartheta_1 > 63^\circ$ erreicht keine direkte Strahlung den Erdboden. Der Schattenwurf der Wolke überdeckt also das gesamte Gebiet. Aus diesem Grund ist die Abweichung von J_{\max} zu J_{mit} sehr gering, da sich unter der Wolke nahezu horizontal homogene Strahlungsverhältnisse eingestellt haben. Die Abweichung von J_{\min} zu J_{mit} nimmt von -38% bei $\vartheta_0 = 36^\circ$ bis $\vartheta_0 = 66^\circ$ stetig ab. Bei $\vartheta_0 > 66^\circ$ bleibt die Abweichung konstant -3%.

Bei 10% Bedeckung (strich-punktierte Linie in Abb. 8.10) ist $\vartheta_1 = 81^\circ$. Ein solch niedriger Sonnenzenitwinkel wird während der Simulationsperiode nicht erreicht, so dass zu jedem Simulationszeitpunkt direkte Strahlung den Erdboden erreicht.

50% Bedeckung

Die strich-dreifach-punktierte Linie in Abb. 8.10 beschreibt die Abweichungen von J_{\max} und J_{\min} zu J_{mit} bei $B_w = 50\%$ mit $\vartheta_1 = 31^\circ$. Dieser hohe Sonnenstand wird ebenfalls nicht erreicht, so dass zu keinem Simulationszeitpunkt ungestörte, direkte Strahlung den Erdboden erreicht. Die Abweichungen zu J_{mit} sind aus diesem Grunde gering.

8.7.2 Vergleich von J_{mit} zu $J_S(\text{NO}_2)$ einer unbewölkten Atmosphäre

Abb. 8.12 zeigt die prozentualen Abweichungen von J_{mit} und seiner Variationsbreite bei unterschiedlichen Bedeckungsgraden zu $J_S(\text{NO}_2)$ einer unbewölkten, aerosolfrei-

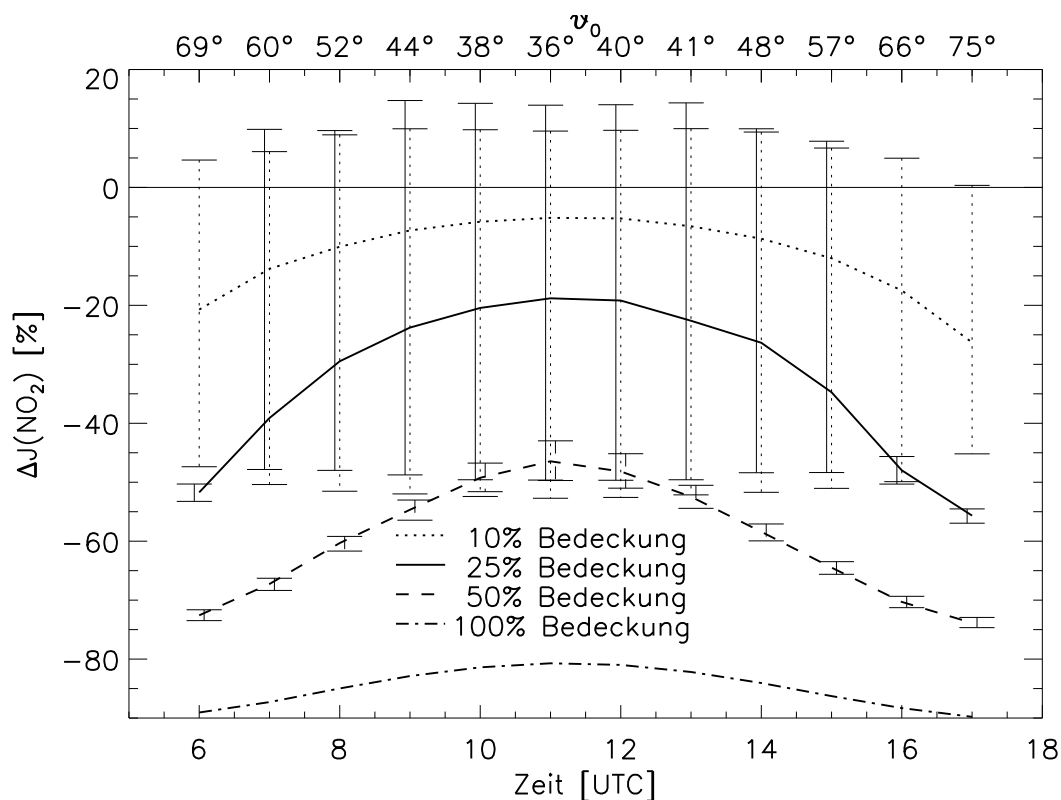


Abbildung 8.12: Prozentuale Abweichung von J_{mit} und seiner Variationsbreite zu $J_S(\text{NO}_2)$ einer wolkenlosen, aerosolfreien Atmosphäre.

en Atmosphäre für den Tagesgang am 6.8.1998.

Mit dieser Abbildung lassen sich die Effekte der Wolke bei unterschiedlichen Bedeckungsgraden untersuchen. Zum einen wird die Verminderung von $J_S(\text{NO}_2)$ auf Grund der Abschattung durch die Wolke deutlich. Zum anderen aber zeigen sich bei bestimmten Sonnenzenitwinkeln und Bedeckungsgraden Erhöhungen von $J_S(\text{NO}_2)$ über den wolkenfreien Fall, welche auf die Effekte an den seitlichen Wolkenrändern und die gegenseitige Beeinflussung zweier Wolken zurückzuführen sind.

100% Bedeckung

Die strich-punktierte Linie bezieht sich auf die Abweichung von $J_S(\text{NO}_2)$ bei einer Bedeckung von $B_w = 100\%$ zu $J_S(\text{NO}_2)$ der wolkenfreien Simulation. Bei kleinen Sonnenzenitwinkeln ist die Abweichung geringer als bei größeren Sonnenzenitwinkeln. $J_S(\text{NO}_2)$ wird jedoch bei allen betrachteten ϑ_0 um 81% bis 90% reduziert.

50% Bedeckung

Bei einem Bedeckungsgrad von $B_w = 50\%$ (gestrichelte Linie) betragen die Abweichungen von J_{mit} zu $J_S(\text{NO}_2)$ der wolkenfreien Atmosphäre bei den größeren Sonnenzenitwinkeln bis zu -74% . Bei den kleineren Sonnenzenitwinkeln sind die Abweichungen zu $J_S(\text{NO}_2)$ der wolkenfreien Atmosphäre -46% .

25% Bedeckung

Die durchgezogene Linie beschreibt die Abweichung von J_{mit} bei $B_w = 25\%$ zu $J_S(\text{NO}_2)$ der wolkenfreien Atmosphäre. Sie beträgt bei kleinen Sonnenzenitwinkeln -19% und bei großen Sonnenzenitwinkeln bis -56% . In der Zeit zwischen 9 UTC und 13 UTC beträgt die Erhöhung über den wolkenfreien Fall 14.0% bis 14.7% . Die maximale Erhöhung von J_{max} über $J_S(\text{NO}_2)$ im unbewölkten Fall findet um 9 UTC bei einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 44^\circ$ statt und beträgt 14.7% .

Die Ursache, dass das Maximum bei 44° auftritt ist Folgende: Der seitliche Wolkenrand z_w erscheint unter dem Sonnenzenitwinkel ϑ_0 in der Größe:

$$z_w^* = z_w \sin \vartheta_0. \quad (8.4)$$

Somit wird z_w^* mit abnehmendem Sonnenzenitwinkel kleiner. Die effektivste Erhöhung von $J_S(\text{NO}_2)$ auf Grund der Größe des seitlichen Wolkenrandes tritt damit bei großen Sonnenzenitwinkeln auf. Allerdings kann der seitliche Wolkenrand nur dann vollständig beschienen werden, wenn die benachbarte Wolke ausreichend weit entfernt ist. Ansonsten wird ein Teil des seitlichen Wolkenrandes durch die benachbarte Wolke abgeschattet. Diese Abschattung tritt dann in Kraft, wenn der Sonnenzenitwinkel größer als ϑ_1 ist. Ein weiterer Effekt, welcher der stärkeren Erhöhung bei zunehmendem Sonnenzenitwinkel entgegenwirkt, ist die Verminderung der direkten Strahlung bei zunehmendem Sonnenzenitwinkel. Die Erhöhung am seitlichen Wolkenrand wird dadurch reduziert. Dieser Effekt wurde bereits mit Abb 5.27 für die Erhöhung am Wolkenoberrand diskutiert. Das Zusammenwirken der beschriebenen Effekte verursacht bei der verwendeten Wolkenkonfiguration, dass die maximale Erhöhung über den wolkenfreien Fall bei 44° stattfindet.

10% Bedeckung

Die gepunktete Linie beschreibt die Abweichung von J_{mit} bei 10% Bedeckung zu $J_S(\text{NO}_2)$ in unbewölkter Atmosphäre. Bei kleinen Sonnenzenitwinkeln beträgt die

Abweichung -5% und bei größeren Sonnenzenitwinkeln bis zu -26%. Es ist zu beachten, dass die Abweichung des maximalen J_{\max} bei 10% Bedeckung zu $J_S(\text{NO}_2)$ der wolkenfreien Simulation bei kleinen Sonnenzenitwinkeln und nur etwa +10% beträgt und damit geringer ist als die Abweichung des maximalen J_{\max} bei einem Bedeckungsgrad von $B_w = 25\%$ zu $J_S(\text{NO}_2)$ in wolkenloser Atmosphäre. Diese Erhöhung ist verursacht durch die Erhöhung der diffusen Strahlung zwischen den Wolkenelementen auf Grund der Effekte an den seitlichen Rändern der Wolke. Die größte Abweichung des maximalen J_{\max} zu $J_S(\text{NO}_2)$ in wolkenlosen Bedingungen ist dann zu erwarten, wenn Bedeckungsgrad und Sonnenzenitwinkel so gewählt werden, dass die direkte Strahlung nur in einem schmalen Band zwischen den Wolken hindurch die Erdoberfläche erreicht. Bei dieser Konstellation ist die Photonenkanalisierung im nicht abgeschatteten Band am größten.

8.8 Zusammenfassende Bemerkungen

Die 2-dimensionale Simulation des $J(\text{NO}_2)$ -Feldes zeigte deutlich eine Abschattung unterhalb der Wolke in Abhängigkeit vom Sonnenzenitwinkel und eine Erhöhung von $J(\text{NO}_2)$ am Wolkenoberrand und am seitlichen Rand der Wolke, welcher der Sonne zugewandt war.

Außerdem wurde kurz auf die Problematik der offenen Randbedingungen im Strahlungstransportmodell SHDOM und den Einfluss von urbanem Aerosol bei durchbrochener Bewölkung eingegangen.

Die approximative Betrachtung von partieller Bewölkung mit der *IPS1*- oder *IPS2*-Methode verursacht am Boden einen großen Fehler im Vergleich zur *2D*-Simulation. Bei hohen Bedeckungsgraden sind die Abweichungen von $J(\text{NO}_2)$ berechnet mit der *IPS2*-Methode zu $J(\text{NO}_2)$ aus *2D* geringer als die Abweichungen der *IPS1*-Methode zu $J(\text{NO}_2)$ aus *2D*. Sie betragen immerhin noch 20%. Bei kleinem Bedeckungsgrad sind die Abweichungen von $J(\text{NO}_2)$ der *IPS1*-Methode zu $J(\text{NO}_2)$ aus *2D* geringer als die Abweichungen von $J(\text{NO}_2)$ der *IPS2*-Methode zu $J(\text{NO}_2)$ aus *2D*. Bei großen Sonnenzenitwinkeln sind die Abweichungen dennoch sehr hoch.

Die approximativen Verfahren zur Berechnung des Strahlungsfeldes bei partieller Bewölkung führen zu deutlichen Fehlern bei der Bestimmung des Strahlungsfeldes unterhalb der Wolke und sind daher nicht geeignet zur Bestimmung des Strahlungsfeldes bei solchen Bedingungen. Lediglich für geringere Bedeckungsgrade und kleine Sonnenzenitwinkel ist $\Delta J(\text{NO}_2)$ von $J(\text{NO}_2)$ aus *IPS1* zu $J(\text{NO}_2)$ aus *2D* akzeptabel.

Oberhalb der Wolken in 2 km Höhe sind die Abweichungen von $J(\text{NO}_2)$ der *IPS1*-Methode zu $J(\text{NO}_2)$ der *2D*-Rechnung für Sonnenzenitwinkel kleiner 69° maximal 10% unabhängig vom Bedeckungsgrad. Die Abweichungen von $J(\text{NO}_2)$ der *IPS2*-Methode sind deutlich höher.

Der Vergleich des Tagesganges des gemessenen und simulierten $J(\text{NO}_2)$ in aerosolbelasteter Atmosphäre zeigt eine quantitativ gute Übereinstimmung. Zur Evaluierung des 3-dimensionalen Strahlungstransportmodells SHDOM war die Datenlage der Messungen jedoch nicht ausreichend. Dazu wäre zu jedem Zeitpunkt der Simulation die Kenntnis des Bedeckungsgrades und der optischen Dicke der einzelnen Wolken notwendig. Diese Informationen könnten zumindest zu den Zeitpunkten von Satelliten geliefert werden, zu denen das Gebiet von Satelliten überflogen wird. Zusätzlich wäre eine präzise Angabe des atmosphärischen Aerosolgehaltes notwendig. Um einen Tagesgang von $J(\text{NO}_2)$ qualitativ mit Messungen zu vergleichen, müßten die Simulationen für kurze Zeitintervalle ausgeführt werden. Dazu könnten die Daten der Satelliten durch Messungen der Vertikalprofile von Windrichtung und -geschwindigkeit ergänzt werden.

Die Simulationen konnten jedoch zur Untersuchung und Erklärung der Effekte von durchbrochener Bewölkung auf das 2-dimensionale $J(\text{NO}_2)$ -Feld verwendet werden.

Kapitel 9

3-dimensionale Simulation einer Wolkenlücke

In einer weiteren 3-dimensionalen Simulation wurden die Effekte einer Wolkenlücke in einer ansonsten horizontal homogenen Bewölkung untersucht. Dabei konnten die Simulationsergebnisse mit Messungen eines $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometers während eines Flugzeugexperiments verglichen werden.

In Abschnitt 9.1 wird zunächst der Messflug beschrieben. Abschnitt 9.2 erläutert die Diskretisierung des Modellgebietes und die Aufbereitung der Messdaten für das Modell. In Abschnitt 9.3 werden die Ergebnisse dieser Simulation diskutiert.

9.1 Der Messflug

Im Rahmen der BERLIOZ-Messkampagne wurde am Nachmittag des 5.8.1998 eine annähernd homogene Schichtbewölkung mit einer vertikalen Ausdehnung von 500 m in 2.5 km bis 3 km Höhe beobachtet. Innerhalb dieser Wolkenschicht befand sich eine nahezu kreisrunde Wolkenlücke mit einem Durchmesser von 1 km. Unterhalb und oberhalb der Wolkenschicht und innerhalb der Wolkenlücke konnten Flugzeug-gestützte Messungen von *Junkermann* (pers. Mitteilung, 1998) durchgeführt werden. Dabei wurden meteorologische Parameter wie Temperatur, Druck und Taupunkt, aber auch die Ozonkonzentration und die beiden Photodissoziationsfrequenzen $J(\text{NO}_2)$ und $J(\text{O}(^1\text{D}))$ aufgezeichnet.

Abb. 9.1 enthält im oberen Teil die GPS-Daten (Global Positioning System) des Messfluges, welche die geographische Position des Flugzeuges beschreiben. Er er-

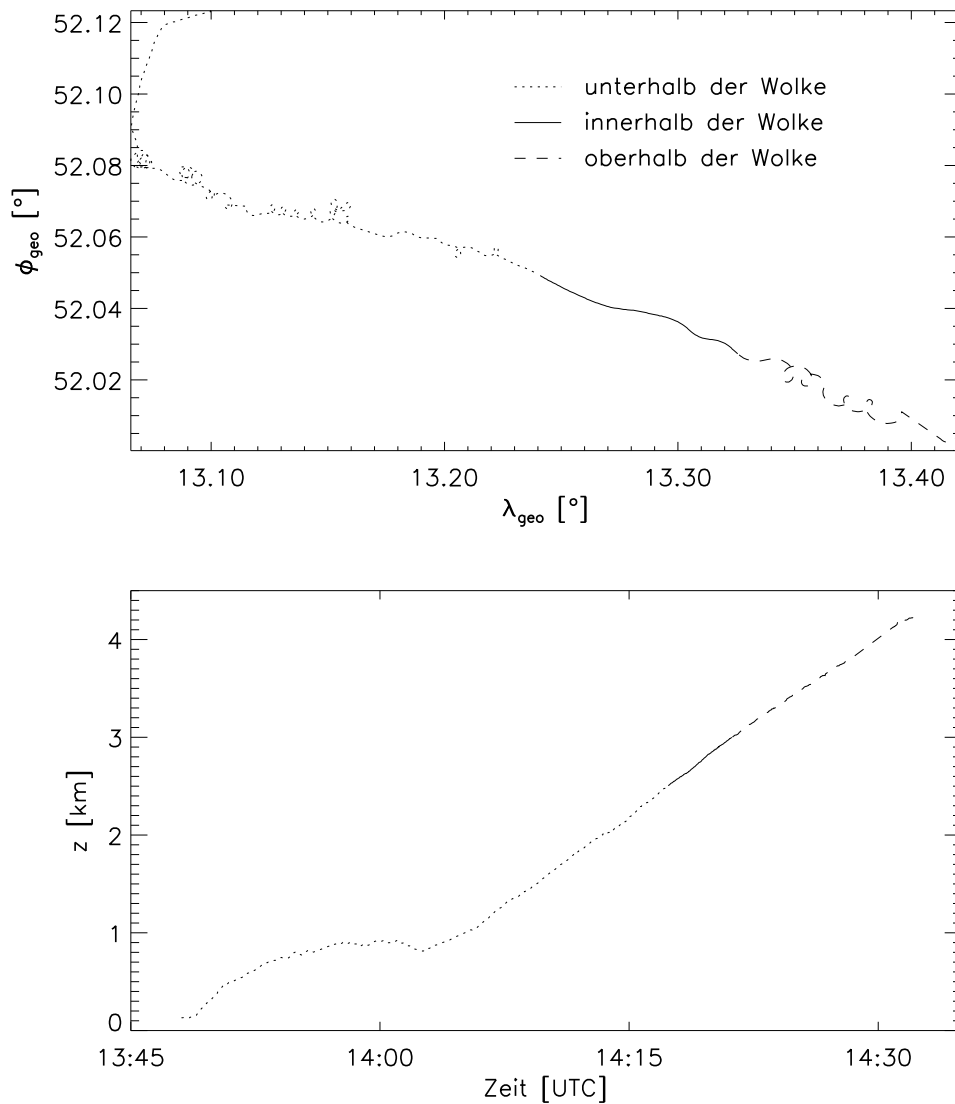


Abbildung 9.1: Oben: GPS-Daten des Fluges. Unten: Vertikalprofil des Fluges.

streckte sich über die geographischen Breiten ϕ_{geo} von 52.00°N bis 52.12°N und über die geographischen Längen λ_{geo} von 13.07°O bis 13.42°O . Die gepunktete Linie bezieht sich auf den Flugabschnitt unterhalb der Wolke, die durchgezogene auf den Flugabschnitt innerhalb der Wolkenlücke und die gestrichelte auf den Flugabschnitt oberhalb der Wolke. Deutlich erkennbar sind die schraubenförmigen Bewegungen unterhalb und oberhalb der Wolke.

Im unteren Teil der Abb. 9.1 ist das Vertikalprofil des Fluges in Abhängigkeit von der Zeit dargestellt. Der gesamte Messflug dauerte von 13:48 UTC bis 14:32 UTC und erstreckte sich bis in eine Höhe von 4.2 km.

9.2 Die Modelleingabe

Für Temperatur, Luftdruck und Ozonkonzentration wurden horizontal homogene Verhältnisse angenommen. Da die Sichtweite entsprechend der Berliner Wetterkarte (Hrsg: Institut für Meteorologie, FU Berlin) während des Fluges etwa 40 km betrug, war die Aerosolkonzentration sehr gering, so dass auch der Einfluss auf das Strahlungsfeld gering war. Deshalb wurde der Aerosolgehalt der Atmosphäre vernachlässigt. Für die Bodenalbedo wurde $A_G = 0.03$ verwendet.

Da die Tropfengrößenverteilungen in der Wolke nicht gemessen werden konnten, wurden sie so gewählt, dass die gemessene und simulierte relative Abnahme von $J(\text{NO}_2)$ innerhalb der Wolke übereinstimmte. Dazu wurde ein linear zunehmender Flüssigwassergehalt von 0.013 gm^{-3} in 2.5 km Höhe bis 0.023 gm^{-3} in 3 km Höhe angenommen. Für den Modenradius wurde $r_{\text{dro}} = 2.25 \mu\text{m}$ und für die Standardabweichung $\sigma_{\text{dro}} = 2$ angenommen. Die Parameter r_{dro} und σ_{dro} entsprechen denen der Stratus-II-Wolke in Tab. 2.3. Diese Parameter legen die monomodale logarithmische Normalverteilung für die Wolkentropfenverteilung (vgl. Gl. 2.26) fest. Der Sonnenwinkel wurde mit einem mittleren Wert für die Flugzeit (14:10 UTC) und geographische Position (52.06°N , 13.24°O) bestimmt. Dadurch ergab sich ein Sonnenzenitwinkel $\vartheta_0 = 49^\circ$ und ein Sonnenazimutwinkel $\varphi_0 = -62^\circ$.

Für den Vergleich der Simulation mit den Beobachtungswerten wurde das 3-dimensionale Strahlungstransportmodell SHDOM verwendet. Das Modell wurde mit 4 Strömen in der ϑ -Richtung und 8 Strömen in der φ -Richtung gerechnet. Das Abbruchkriterium für die Iteration der Strahldichte lag bei 10^{-3} . Die seitlichen Randbedingungen waren periodisch.

Die Rechnungen wurden wiederum auf dem Parallelrechner HP-Convex SPP2000 des ZDV der Universität Mainz durchgeführt. Für die dargestellte Berechnung wurden 4 Prozessoren mit jeweils 352 MB Hauptspeicher belastet. Die gesamte CPU-Zeit betrug 6.13 Stunden. Durch die Parallelisierung ergab sich eine effektive Rechenzeit von 2.22 Stunden.

Die Diskretisierung des Modellgebietes beinhaltete eine vertikale Auflösung von 100 m bis zum Oberrand der Wolke. Zur präzisen Definition der oberen und unteren Wolkenbegrenzung wurden wiederum zusätzliche Schichten am Wolkenoberrand und am Wolkenunterrand mit einer vertikalen Ausdehnung von 0.1 m eingefügt. Oberhalb der Wolke war die Auflösung gröber und reichte bis in eine Höhe von 70 km. In horizontaler Richtung wurde die Wolkenlücke entsprechend Abb. 9.2 in beide Rich-

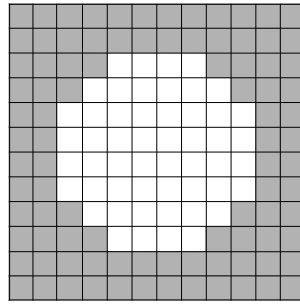


Abbildung 9.2: Horizontalansicht des diskretisierten Gebietes mit 12 Gitterzellen jeweils in x- und y-Richtung. Die grau schattierte Fläche beschreibt die Wolke.

tungen in 12 Gitterzellen à 125 m aufgelöst. Die grau schattierte Fläche beschreibt die Wolke.

9.3 Simulationsergebnisse

Zunächst werden die Ergebnisse der Simulation von $J(\text{NO}_2)$ an Hand eines Horizontalschnittes und eines Vertikalschnittes durch das Modellgebiet beschrieben. Anschließend werden die Simulationsergebnisse mit den Messungen verglichen.

Horizontalschnitt durch das Modellgebiet

Abb. 9.3 zeigt einen Horizontalschnitt am Unterrand der Wolke in 2.5 km Höhe durch das simulierte $J(\text{NO}_2)$ -Feld. Die schraffierte Fläche am Rand stellt die Gitterzellen dar, in denen das Modell Wolken simuliert. Die Position der Sonne ist etwa West-Süd-West ($\varphi_0 = -62^\circ$).

In dieser Abbildung wird der Einfluss des solaren Azimutwinkels von $\vartheta_0 = -62^\circ$ deutlich. Da direkte Strahlung auf den Wolkenrand im Inneren der Wolkenlücke trifft, ist dort durch die Reflektion an der Wolke bzw. dem seitlichen Wolkenrand $J(\text{NO}_2)$ am größten. Seinen maximalen Betrag von $12 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ hat $J(\text{NO}_2)$ bei $x = 1.125 \text{ km}$ und $y = 1 \text{ km}$.

An der Seite, an der die Wolke nicht von der direkten Strahlung beschienen wird, ist $J(\text{NO}_2)$ geringer. Den minimalen Betrag von $4.9 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ nimmt $J(\text{NO}_2)$ bei $x = 0.5 \text{ km}$ und $y = 0 \text{ km}$ an.

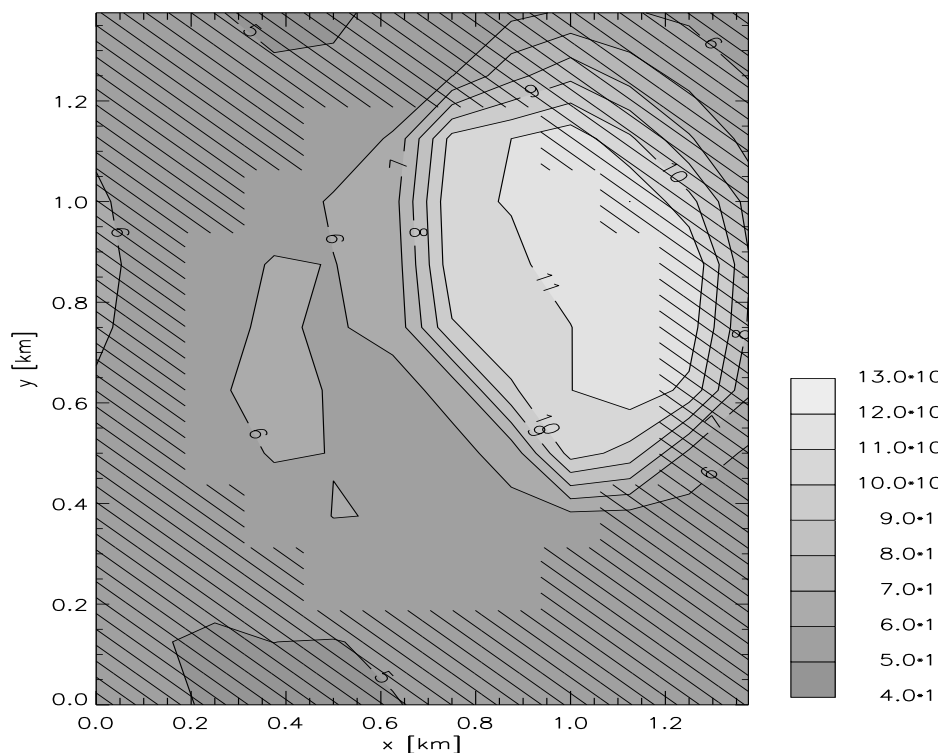


Abbildung 9.3: Horizontalschnitt bei $z = 2.5$ km durch das simulierte $J(\text{NO}_2)$ -Feld in 10^{-3} s^{-1} . Die Sonne steht etwa in West-Süd-West ($\varphi_0 = -62^\circ$).

Vertikalschnitt durch das Modellgebiet

Abb. 9.4 zeigt den Vertikalschnitt durch das Modellgebiet bei $y = 1$ km. Das entspricht der Fläche, an welcher $J(\text{NO}_2)$ in Abb. 9.3 sein Maximum erreicht. Die Darstellung der vertikalen Ausdehnung ist gestaucht. Die schraffierte Fläche am Rand des Modellgebietes beschreibt die Ausdehnung der Wolke an diesem Ort. Zunächst ist die direkte Strahlung erkennbar, welche durch die Wolkenlücke einfällt. Wegen der periodischen Randbedingungen tritt die direkte Strahlung, welche am rechten Rand das Modellgebiet verlässt, am linken Rand wieder ein. In 1.5 km Höhe ist die direkte Strahlung jedoch so stark reduziert, dass sich unterhalb ein nahezu horizontal homogenes Feld bildet. Lediglich am Boden sind die Auswirkungen der Abschattung durch die Wolke zu erkennen. $J(\text{NO}_2)$ nimmt bei $x = 0.625$ km und $z = 0.1$ km seinen minimalen Wert von $4.8 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ an. Bei $x = 0.4$ km ist $J(\text{NO}_2)$ am Boden im Vergleich zu den anderen Bodenwerten erhöht, hervorgerufen durch die direkte Strahlung, welche durch die Wolkenlücke eindringt. $J(\text{NO}_2)$ ist oberhalb des bewölkten Gebietes größer als oberhalb der Wolkenlücke.

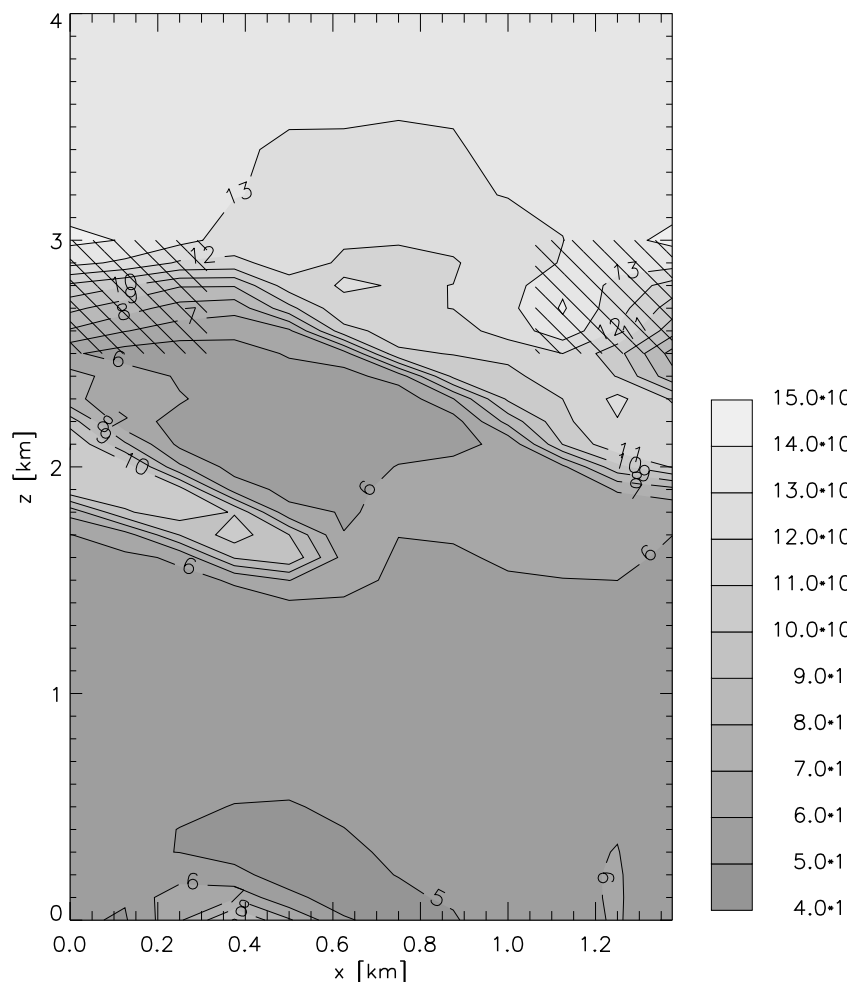


Abbildung 9.4: Vertikalschnitt bei $y = 1 \text{ km}$ durch das simulierte $J(\text{NO}_2)$ -Feld in 10^{-3} s^{-1} .

Auf der sonnenbeschienenen Seite (rechts) findet kaum eine Reduktion von $J(\text{NO}_2)$ innerhalb der Wolke statt. Der Wolkenrand führt zu relativ hohen $J(\text{NO}_2)$ -Werten vergleichbar mit der Erhöhung oberhalb und im obersten Bereich der Wolke.

Vergleich der Simulationsergebnisse mit Messdaten

Abb. 9.5 zeigt das normierte Vertikalprofil von $J(\text{NO}_2)$. Die Rauten beziehen sich dabei auf die Messungen. Die durchgezogene Linie beschreibt das simulierte, horizontal über das gesamte Modellgebiet gemittelte Vertikalprofil von $J(\text{NO}_2)$. Die horizontalen Balken beschreiben die simulierte Schwankungsbreite zwischen dem minimalen und maximalen $J(\text{NO}_2)$ innerhalb der Schichten.

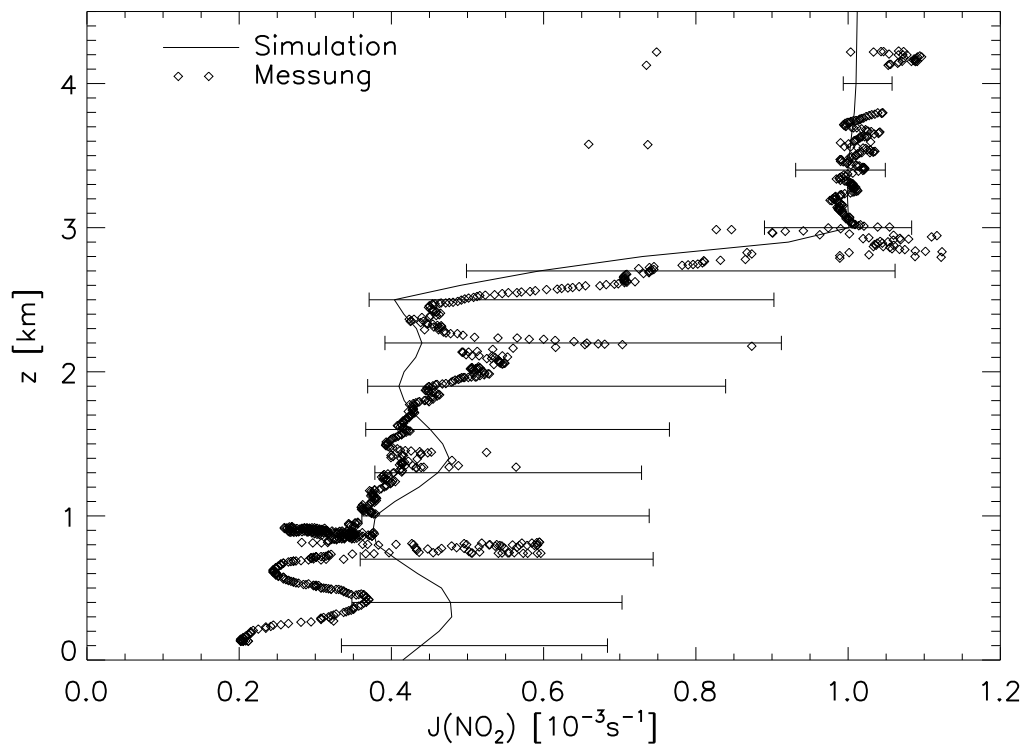


Abbildung 9.5: Normiertes Vertikalprofil des gemessenen und simulierten $J(\text{NO}_2)$. Die horizontalen Balken beschreiben die Schwankungsbreite des simulierten $J(\text{NO}_2)$ innerhalb dieser Schicht.

Der Vergleich der Simulationsergebnisse mit den Messungen von $J(\text{NO}_2)$ ist nicht eindeutig, da die GPS-Daten lediglich die absolute Position und nicht die relative Position des Flugzeuges zur Wolke angeben. Da sich jedoch die Wolke zusammen mit der atmosphärischen Strömung bewegt, wären detaillierte, zeitlich hochaufgelöste Vertikalprofile von Windrichtung und Windgeschwindigkeit notwendig, um die Flugzeugmessungen auf ein ruhendes Koordinatensystem zu projizieren und damit einen Vergleich der Absolutwerte von $J(\text{NO}_2)$ zu ermöglichen. Aus Sondaufstiegen konnte lediglich die vorherrschende Windrichtung in der Höhe der Wolken-schicht abgeleitet werden. Diese war West mit einer Windgeschwindigkeit von 13 ms^{-1} bis 15 ms^{-1} .

Der Mangel an Messdaten, was die Position des Flugzeuges relativ zur Wolke, aber auch das Tropfenspektrum in der Wolke betrifft, erlaubt nur eine quantitative Aussage über die Beeinflussung des Strahlungsfeldes durch die Wolkenlücke. Aus diesem Grund wurden nicht die Absolutwerte von $J(\text{NO}_2)$ verglichen, sondern die normier-

ten $J(\text{NO}_2)$ -Profile. Dazu wurde jeweils aus den Messdaten und der Simulation ein mittleres $J(\text{NO}_2)$ aus dem Höhenbereich oberhalb der Wolke in 3 km bis 3.5 km gebildet. Auf diesen Mittelwert wurden die Profile normiert.

Ein weiterer Vorteil beim Vergleich von normierten Profilen ist, dass dadurch die gemessenen $J(\text{NO}_2)$ -Werte von der Kalibrierung unabhängig werden. Die Kalibrierung der $J(\text{NO}_2)$ -Filterradiometer ist u.a. auch von der sogenannten Filterfunktion abhängig (*Junkermann et al.*, 1989). Diese simuliert das Produkt aus Quantenausbeute und Absorptionsquerschnitt, mit welchem die einfallende Strahlung gewichtet wird (vgl. Gl. (R-4.3)).

Betrachtet man den Vergleich der normierten Vertikalprofile aus Messung und Simulation in Abb. 9.5, so wird deutlich, dass die Variationsbreite oberhalb der Wolke geringer ist als innerhalb und unterhalb der Wolke. Ein Vergleich mit Abb. 9.4 zeigt ebenfalls, dass das $J(\text{NO}_2)$ -Feld oberhalb der Wolke nur wenig variiert. Mit zunehmender Höhe über der Wolke nimmt die Variationsbreite weiter ab und das $J(\text{NO}_2)$ -Feld nähert sich der horizontalen Homogenität. Die größte Variationsbreite befindet sich im mittleren Teil der Wolkenschicht. Vergleicht man dies wieder mit Abb. 9.4, so zeigen sich starke Erhöhungen am Wolkenrand, welcher von der Sonne beschienen ist, und stärkere Reduktionen von $J(\text{NO}_2)$ auf der von der Sonne nicht direkt angestrahlten Seite der Wolkenlücke. Nach unten nimmt die Variationsbreite ab.

Die größere Variation der Messwerte innerhalb eines Höhenniveaus ist durch die schraubenförmige Flugbahn hervorgerufen. Ein Teil der Flugbahn lag in dem durch die Wolke abgeschatteten Bereich und ein anderer Teil der Flugbahn war von der Sonne beschienen.

9.4 Zusammenfassende Bemerkungen

Wie bereits in Abschnitt 9.2 beschrieben war zur Simulation des dargestellten Modellgebietes mit dem 3-dimensionalen Strahlungstransportmodell SHDOM ein hoher Hauptspeicherplatzbedarf (je 352 MB auf den 4 Prozessoren) und eine hohe Rechenzeit (mehr als 6 Stunden) notwendig. Dieser Speicherplatzbedarf wird nicht nur durch das definierte Modellgebiet von $12 \times 12 \times 60$ Gitterzellen eingenommen, sondern enthält zusätzliche freie Speicherplatzkapazitäten, um die adaptive Gitterteilung zu ermöglichen. Wegen der hohen horizontalen Inhomogenität des Modellgebietes, wird die Gitterteilung im vorliegenden Beispiel intensiv genutzt. Dadurch werden die Un-

terschiede in den optischen Eigenschaften besonders am Wolkenrand reduziert und damit auch die Differenz der resultierenden Strahldichte in den benachbarten Gitterzellen heruntergesetzt.

Der hohe Hauptspeicherplatzbedarf in den Strahlungstransportmodellen liegt im 6-dimensionalen Strahlungstransportproblem begründet. Neben den drei räumlichen Dimensionen x , y und z ist die Strahldichte auch vom betrachteten Raumwinkel abhängig. Dieser wird beschrieben durch den Zenitwinkel ϑ und den Azimutwinkel φ . Die sechste Dimension ist die Wellenlänge. In der diskutierten Simulation führte dies zu einer $12 \times 12 \times 60 \times 4 \times 8 \times 133$ Matrix. Dies entspricht annähernd 37 Millionen Matrixelementen. Die Modellierung von 3-dimensionalen Modellgebieten verursacht damit einen sehr hohen Bedarf an Hauptspeicher und Rechenleistung.

Da die aus 1-dimensionalen SHDOM-Simulationen resultierenden aktinischen Flüsse in sehr guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen von 1-dimensionalen Strahlungstransportmodellen (vgl. Abschnitt 5.1) liegen, sind auch für 2- oder 3-dimensionale Simulationen verlässliche Ergebnisse zu erwarten.

Der Vorteil von SHDOM besteht darin, dass das Ergebnis einer Simulation das vollständige räumliche Strahlungsfeld liefert. Diese Strahlungsfelder sind sehr gut geeignet, um die Effekte horizontaler Inhomogenitäten zu untersuchen. Erst das physikalische Verständnis solcher Prozesse ermöglicht Parametrisierungen, welche solch eine aufwendige Rechnung entbehrlich machen.

Ein technischer Vorteil von SHDOM besteht in der übersichtlichen Programmierweise des Modellcodes. Dadurch lassen sich Anpassungen an veränderte Problemstellungen recht einfach realisieren.

Kapitel 10

Zusammenfassung

Das Verständnis der in der Stratosphäre und Troposphäre stattfindenden Ozonproduktions- und Ozonabbaumechanismen ist eines der wichtigsten Ziele der aktuellen Umweltforschung. Da Ozon in der Atmosphäre ausschließlich durch photochemische Prozesse gebildet wird, ist die Kenntnis der aktinischen Strahlung eine grundlegende Voraussetzung für die Prognose von Ozonkonzentrationen. Die vorliegende Arbeit befasst sich daher mit der Modellierung der aktinischen Strahlung als physikalischer Basis zur Untersuchung photochemischer Prozesse.

Dazu wurde eine Modellhierarchie entwickelt, welche ausgehend von der Berechnung der optischen Eigenschaften der atmosphärischen Extingenten den atmosphärischen Strahlungstransport in 1-, 2- oder 3-dimensionalen Modellgebieten bestimmt. Die wichtigsten Extingenten sind die streuenden und absorbierenden Luftmoleküle, die Aerosolpartikel und die Wolkentropfen. Zunächst wurden die optischen Eigenschaften der einzelnen Extingenten getrennt abgeleitet und anschließend zur Bestimmung der optischen Eigenschaften der Atmosphäre zusammengefasst. Da zur Bestimmung von Photodissoziationsfrequenzen eine hohe spektrale Auflösung notwendig ist, wurden auch die optischen Eigenschaften in dieser Auflösung zur Verfügung gestellt.

Zur Bestimmung der aktinischen Strahlung in Abhängigkeit von den berechneten optischen Eigenschaften der Atmosphäre wurden verschiedene Strahlungstransportmodelle verwendet. Diese unterscheiden sich zum einen durch die Lösungsmethode der Strahlungstransportgleichung und zum anderen durch die Anzahl der räumlichen Dimensionen: Zum einen 1-dimensionale Strahlungstransportmodelle, welche horizontal homogene atmosphärische Bedingungen voraussetzen und zum anderen ein 3-dimensionales Strahlungstransportmodell, welches horizontale Inhomogenitäten berücksichtigt.

Zunächst wurden die unterschiedlichen Lösungsverfahren miteinander verglichen. Dabei stellte sich heraus, dass sowohl das δ -Vier-Strom-Verfahren als auch das SHDOM in sehr guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen des als exakt anzusehenden Diskrete-Ordinaten-Verfahrens liegen.

Zur Überprüfung des entwickelten Modells zur Bestimmung der optischen Eigenschaften der Atmosphäre und zur Untersuchung des Einflusses der verschiedenen Extingenten auf das atmosphärische Strahlungsfeld wurden zahlreiche Sensitivitätsstudien mit dem 1-dimensionalen Strahlungstransportmodell (δ -Vier-Strom-Verfahren) durchgeführt.

Der Einfluss von Ozon wirkt sich fast ausschließlich auf den Anteil der Strahlung mit Wellenlängen kleiner 340 nm aus. Die Auswirkungen der Stickstoffdioxid-Absorption auf das Strahlungsfeld sind weitaus geringer als die des Ozons. Sie sind für Standard-Stickstoffdioxid-Konzentrationen und moderate Sonnenzenitwinkel vernachlässigbar.

Bei der Untersuchung des Einflusses von Aerosolpartikeln auf den aktinischen Fluss wurde festgestellt, dass sowohl die chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel, als auch die Aerosolanzahlkonzentration, die Größenverteilung und die relative Feuchte der umgebenden Luftmasse einen entscheidenden Einfluss nehmen. Die Löslichkeit der Aerosolpartikel dagegen hat eher eine geringere Auswirkung auf das Strahlungsfeld.

Die Veränderung des aktinischen Flusses durch Wolken ist wesentlich größer als die durch Aerosolpartikel. Dabei sind sowohl die optische Dicke der Wolke, als auch die Größenverteilung der Wolkentropfen und das Vertikalprofil des Flüssigwassergehalts der Wolke von entscheidender Bedeutung. Der aktinische Fluss wird oberhalb und im oberen Teil der Wolke erhöht und unterhalb der Wolke reduziert. Bei Anwesenheit von ruralen Aerosolpartikeln in der bewölkten Atmosphäre wird der Aerosoleffekt durch die Wolke reduziert. Bei urbanen Aerosolpartikeln dagegen werden die Auswirkungen des Aerosols verstärkt.

Für alle Extingenten gilt, dass mit zunehmendem Sonnenzenitwinkel die Auswirkungen auf das Strahlungsfeld wegen der Verlängerung des Photonenweges durch die Atmosphäre zunehmen.

Im Anschluss an die Sensitivitätsstudien wurde eine Evaluierung des 1-dimensionalen Strahlungstransportmodells durchgeführt. Dazu wurde der spektrale aktinische Fluss am Boden mit den Resultaten anderer Strahlungstransportmodelle verglichen. Die Modelleingabe für die Vergleichsstudie stammte aus Messungen in unbewölkter

Atmosphäre. Die Übereinstimmung der Simulationsergebnisse war sehr gut. Die größten Abweichungen betragen etwa 10% bei Wellenlängen um 300 nm und $\pm 1\%$ bei Wellenlängen größer 500 nm. Zum zweiten konnten gemessene Vertikalprofile des aktinischen Flusses mit entsprechenden Simulationsergebnissen in bewölkter Atmosphäre verglichen werden. Außerdem standen Vertikalprofile von $J(\text{NO}_2)$ in unbewölkter und bewölkter Atmosphäre zur Verfügung. Die Übereinstimmung zwischen den gemessenen und simulierten aktinischen Flüssen und $J(\text{NO}_2)$ lagen im Wesentlichen innerhalb der Messgenauigkeit der verwendeten Instrumente.

Bei einer Anwendung der entwickelten Modellhierarchie konnten die simulierten aktinischen Flüsse am Boden mit spektralen Messung verglichen werden. Es zeigte sich, dass der Aerosoleinfluss während dieser Messkampagne eine Reduktion des aktinischen Flusses um etwa 10% bis 40% in Abhängigkeit von der Wellenlängen und dem Sonnenzenitwinkel verursachte.

Im Weiteren wurden die Effekte durchbrochener Bewölkung auf das Strahlungsfeld untersucht. Die 2-dimensionale Simulation des $J(\text{NO}_2)$ -Feldes zeigte deutlich eine Abschattung unterhalb der Wolke in Abhängigkeit vom Sonnenzenitwinkel und eine Erhöhung des $J(\text{NO}_2)$ am Wolkenoberrand und am seitlichen Rand der Wolke, welcher der Sonne zugewandt war.

Die approximative Betrachtung von partieller Bewölkung mit einem 1-dimensionalen Strahlungstransportmodell wurde mit verschiedenen Methoden durchgeführt. Diese Näherungsverfahren verursachen jedoch im Vergleich zu den Ergebnissen der 2-dimensionalen Simulation unterhalb der Bewölkungsschicht große Fehler. Oberhalb der Wolken sind die Abweichungen der approximativen Verfahren jedoch gering.

Der Vergleich des gemessenen und simulierten Tagesganges von $J(\text{NO}_2)$ bei durchbrochener Bewölkung zeigte Verminderungen von $J(\text{NO}_2)$ durch die Abschattung, aber auch Erhöhungen von $J(\text{NO}_2)$ über den Wert in unbewölkter Atmosphäre. Diese Erhöhungen sind durch die Effekte an den seitlichen Wolkenrändern bedingt. Auch bei diesen Untersuchungen wurde sehr deutlich, dass die sehr häufig eingesetzten 1-dimensionalen Strahlungstransportmodelle bei durchbrochener Bewölkung vollkommen unzureichende Resultate liefern, da diese die Effekte an den seitlichen Wolkenrändern nicht berücksichtigen. Die Variationsbreite der simulierten $J(\text{NO}_2)$ -Schwankungen bei wechselnder Bewölkungssituationen in aerosolbelasteter Atmosphäre lag in guter Übereinstimmung mit den Schwankungen der gemessenen $J(\text{NO}_2)$.

In der abschließenden Simulation einer Wolkenlücke konnte auf die Problematik

bei der Evaluierung der 3-dimensionalen Strahlungstransportmodelle eingegangen werden. Diese Diskussion zeigte die Notwendigkeit von detaillierteren Messungen, welche in zukünftigen Projekten berücksichtigt werden sollten. Nur damit lässt sich eine Evaluierung der 3-dimensionalen Strahlungstransportmodelle realisieren.

Kapitel 11

Ausblick

Bei der intensiven Bearbeitung dieses Themas ergaben sich viele neue Fragestellungen am Rande der Aufgabenstellung, welche im Rahmen dieser Arbeit nicht gelöst werden konnten. In diesem Kapitel sollen solche Fragen kurz diskutiert und Lösungsvorschläge aufgezeigt werden.

11.1 Mie-Theorie

Bereits bei der Anwendung der Mie-Theorie zur Bestimmung der Strahlungseigenschaften der Partikel wurden verschiedene Annahmen gemacht, wie die Sphärizität der Partikel, die interne, homogene Mischung der Substanzen in den Partikeln und, daraus abgeleitet, die Möglichkeit der Bestimmung des Brechungsindex der Partikel aus einer mit dem Volumenanteil gewichteten Mittelung der Brechungsindizes der einzelnen Substanzen.

Die Sphärizität der Partikel ist sowohl für urbane und rurale Aerosolpartikel wegen ihrer geringen Größe, als auch für Wolkentropfen in warmen Wolken hinreichend erfüllt. Doch bereits größere Aerosolpartikel, die beispielsweise aus Seesalz, Wüstenstaub oder Rußagglomeraten bestehen, sind i.A. nicht kugelförmig. Aber auch für Regentropfen und Eispartikel trifft diese Annahme nicht zu.

Die Vielfalt an Form und Orientierung, welche die Partikel annehmen können, erschwert die Untersuchungen der Auswirkungen solcher nicht-sphärischer Partikel auf die Streu- und Extinktionseigenschaften. Im Weiteren stellt sich die Frage, welche Auswirkungen die nicht-sphärischen Partikelpopulationen im Vergleich zu den kugelförmigen Partikelpopulationen als Mittel über die Aerosolgrößenverteilung auf das Strahlungsfeld ausüben.

Ebenso vielfältig wie die Form und Orientierung der Partikel ist die chemische Zusammensetzung derselben. So wurde zur Bestimmung des Brechungsindex der Partikel von einer internen, homogenen Mischung der Substanzen ausgegangen. Wie würde sich das Strahlungsfeld ändern, wenn externe Mischungen vorhanden wären, d.h. beispielsweise Partikel, die nur aus absorbierendem Material bestehen neben anderen Partikeln, die lediglich aus löslichem Material bestehen?

Zur Lösung dieses Problem müsste für den atmosphärischen Aerosolgehalt eine zusätzliche Dimension in das Modell eingefügt werden, welche die unterschiedlichen chemischen Zusammensetzungen der Aerosolpartikel berücksichtigt. Für jede chemische Zusammensetzung müsste das Aufquellen der Aerosolpartikel und aus der feuchten Aerosolverteilung die optischen Eigenschaften des Aerosols getrennt berechnet werden.

Es ist ebenso vorstellbar, dass die Partikel zwar intern, aber nicht homogen gemischt sind. Beispielsweise findet man Aerosolpartikel, welche durch Kondensationsprozesse eine Wasserhaut um einen festen Kern bilden. Wachsen diese Aerosolpartikel weiter an, so entstehen dadurch verschmutzte Wolkentropfen. In den bisherigen Mie-Rechnungen werden jedoch nur Wolkentropfen aus reinem Wasser berücksichtigt. Die Auswirkungen eines festen Kerns innerhalb des Tropfens werden dadurch vernachlässigt.

11.2 Möglichkeiten zur Verbesserung der 1-dimensionalen Strahlungstransportmodelle

Bei der Evaluierung des 1-dimensionalen Strahlungstransportmodells in Kapitel 6.3 und *Früh et al.* (2000b) wurde deutlich, dass die Variation des Sonnenzenitwinkels während der Dauer des Flugzeugexperiments nicht zu vernachlässigen ist. Dies ist im Besonderen dann der Fall, wenn die Messflüge länger andauern oder bei niedrigem Sonnenstand stattfinden. Zur exakten Modellierung solcher Messreihen wäre ein positionsabhängiger Sonnenzenitwinkel innerhalb des Modells notwendig. Dieser könnte die Variation des tatsächlichen Sonnenzenitwinkels während des Messzeitraumes berücksichtigen. Dazu müsste der Sonnenzenitwinkel in Abhängigkeit vom Messzeitpunkt und Messort höhenabhängig im Modell enthalten sein. Es wäre auch eine Korrektur der Messung auf einen mittleren Sonnenzenitwinkel vorstellbar.

Bei großen Sonnenzenitwinkeln führt die Vernachlässigung von Absorbern, welche

nur ein geringes Absorptionsvermögen im relevanten Wellenlängenbereich haben, zu deutlichen Fehlern. So führt die Berücksichtigung der Wasserdampf-Absorption bei einem Sonnenzenitwinkel von $\vartheta_0 = 89.8^\circ$ zu Verminderungen des aktinischen Flusses im Wellenlängenbereich zwischen 590 nm und 600 nm von mehr als 20% (*Trautmann et al.*, 2000). Auch die Untersuchung der Absorption durch Sauerstoff-Dimere, welche im sichtbaren Spektralbereich stattfindet (*Naus und Umbachs*, 1999), wäre interessant zur Abschätzung des Einflusses auf den aktinischen Fluss.

Um diese „vergessenen“ Absorber im Strahlungstransportmodell zu berücksichtigen, müsste für jede einzelne Komponente unter Kenntnis des entsprechenden Absorptionsquerschnitts und der in der Atmosphäre vorhandenen Molekülanzahl der spektrale Absorptionskoeffizient bestimmt werden. Dieser liefert einen Beitrag zum atmosphärischen Extinktionskoeffizienten.

Bei der Diskretisierung der Atmosphäre auf ein kartesisches Gitter, auf welchem die Strahlungstransportgleichung gelöst wird, wird bei den hier verwendeten Verfahren die Krümmung der Erdatmosphäre vernachlässigt. Diese Annahme einer plan-parallelen Atmosphäre ist zulässig für Sonnenzenitwinkel kleiner 75° (*Lenoble*, 1993; *Dahlback und Stamnes*, 1991). Zur Bestimmung des Strahlungstransports bei niedrigeren Sonnenständen ist eine sphärische oder pseudo-sphärische Lösung der Strahlungstransportgleichung notwendig.

Für den pseudo-sphärischen Ansatz wird lediglich die direkte und primär gestreute Strahlung unter Berücksichtigung der sphärischen Geometrie berechnet. Der mehrfach gestreute Anteil der Strahlung dagegen basiert weiterhin auf der plan-parallelen Annahme. Bei Sonnenzenitwinkeln kleiner 90° liefert diese Methode gute Resultate (*Trautmann et al.*, 2000). Bei größeren Sonnenzenitwinkeln jedoch nehmen die Fehler zu (*Dahlback und Stamnes*, 1991). Bei Sonnenzenitwinkeln $\vartheta_0 > 90^\circ$ verursacht die Vernachlässigung der Refraktion in der Atmosphäre zusätzliche Fehler.

11.3 Weitere Sensitivitätsstudien mit 3-dimensionalen Strahlungstransportmodellen

Um den Einfluss durchbrochener Bewölkung in globalen Zirkulations- und Chemie-Transport-Modellen berücksichtigen zu können, müssen weitere Sensitivitätsstudien mit 3-dimensionalen Strahlungstransportmodellen durchgeführt werden, um das Verständnis für die Effekte horizontal inhomogener Wolken- und Aerosolfelder zu

verbessern. Erst danach lassen sich zuverlässige Parametrisierungsansätze ableiten, welche in den globalen Modellen zum Einsatz kommen können. Die im Folgenden beschriebenen Sensitivitätsstudien sind alle mit den in dieser Arbeit vorgestellten Modellen durchführbar.

In dieser Arbeit (vgl. Abschnitt 8.5) wurde bereits eine Studie über den Effekt von urbanem Aerosol in einer partiell bewölkten Atmosphäre durchgeführt. Dazu wurde horizontale Homogenität der Aerosoleigenschaften vorausgesetzt. Es stellte sich heraus, dass innerhalb der Wolke mehr solare Strahlung absorbiert wird als außerhalb der Wolke. Dies könnte eine Ursache für die sogenannte „anomale Absorption“ sein. Da die Strahlungstransportmodelle die gemessene solare Strahlung systematisch überschätzen, wird vermutet, dass die Absorption innerhalb der Wolken höher sein muss als von den Modellen angenommen. Jedoch auch nach 20 Jahren der Forschung ist nicht sichergestellt, dass diese „anomale Absorption“ tatsächlich existiert, oder ob lediglich ein Artefakt der Messgeräte vorliegt (*Wendisch und Keil, 1999*). Um den gefundenen Effekt auf die „anomale Absorption“ zurückzuführen sind weitere Untersuchungen in aerosolbelasteter, partiell bewölkter Atmosphäre notwendig. Außerdem sind Untersuchungen, welche den Einfluss der chemischen Zusammensetzung, Größenverteilung und Anzahlkonzentration der Aerosolpartikel berücksichtigen, notwendig, um den Einfluss des Aerosols in durchbrochener Bewölkung zu verstehen. Untersuchungen bei horizontal inhomogenen Aerosoleigenschaften in durchbrochener Bewölkung sind ebenfalls notwendig, da die Aerosolanzahlkonzentration innerhalb einer Wolke geringer ist als außerhalb. Die Ursache hierfür ist, dass infolge des hohen Feuchteangebotes in der Wolke der größte Teil der Aerosolpartikel zu Wolkentropfen angewachsen ist. Dadurch ergibt sich eine horizontale Inhomogenität der Aerosoleigenschaften (*Wurzler et al. 1994*).

Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnissen wurden horizontal homogene Bedingungen der Wolkeneigenschaften untersucht. Durch turbulente Luftmassenbewegungen haben Wolken jedoch eine höchst inhomogene Flüssigwasserverteilung, auch wenn sie dem Betrachter als homogen erscheinen (*Brenquier, 1990*). Die Inhomogenität der Tropfenverteilung innerhalb einer Wolke hat einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre. *Borde und Isaka (1996)* zeigten, dass eine inhomogene Wolke unter der Annahme konservativer Streuung mehr Strahlung transmittiert als das homogene Gegenstück.

Auch *Coley und Jonas (1996, 1997)* untersuchten den Einfluss von inhomogenen Wolken auf das Strahlungsfeld. Dazu wurden 4 inhomogene Wolkenfelder mit einer

LES (Large Eddy Simulation) erzeugt. Die Albeden dieser inhomogenen Wolken wurde aus einem Monte Carlo Modell abgeleitet und mit einer zweiten Wolke verglichen, bei der jedem Gitterpunkt innerhalb der Wolke ein über die Wolke gemittelter Flüssigwassergehalt zugewiesen wurde. Jeder Gitterzelle, welche vor der Mittelwertbildung einen Flüssigwassergehalt größer null hatte, wird somit der gleiche Wert für den Flüssigwassergehalt zugewiesen. Die geometrische Wolkenausdehnung bleibt dadurch erhalten. Dieser Vergleich zeigte, dass durch die Verwendung des mittleren Flüssigwassergehaltes bei einem Sonnenzenitwinkel von 0° die Wolkenalbedo um mehr als 30% zunahm. Ursache hierfür ist die Glättung der Flüssigwasserverteilung durch die Mittelung. Mit zunehmendem Sonnenzenitwinkel nimmt die Überschätzung der Wolkenalbedo jedoch ab. Auch der Vergleich mit einer Wolke, die ein horizontal gemittelttes Flüssigwasserprofil enthielt, machte deutlich, dass die Vernachlässigung der Inhomogenität der Wolke zu einer Überschätzung der Wolkenalbedo führt (Coley und Jonas, 1997; Hignett und Taylor, 1996).

Die Absorption innerhalb einer Wolke ist von deren Heterogenität abhängig: eine inhomogene Wolke absorbiert weniger Strahlung als eine homogene Wolke sofern die Wolke optisch dünn ist (Borde und Isaka, 1996). Bei einer optisch dicken Wolke kann jedoch die inhomogene Wolke mehr Energie absorbieren. Obwohl die Erhöhung der Absorption gering ist, kann sie eventuell einen Beitrag für die bislang ungeklärte „anomale Absorption“ in Wolken liefern (Borde und Isaka, 1996).

Bisher ist jedoch nicht bekannt, welche Heterogenitätseigenschaften für den Strahlungstransport in Wolken von Bedeutung sind. Ein wichtiges Ziel ist die Entwicklung verlässlicher, statistischer Methoden und Parameter zur Beschreibung der inhomogenen Struktur von Wolken. Da jedoch die subskalige Wolkeninhomogenität für die Wolkenparametrisierung und das Ableiten der Wolkeneigenschaften für die Klimamodellierung und die Verwendung der Satellitendaten eine große Bedeutung haben, besteht hier dringender Forschungsbedarf.

11.4 Möglichkeiten zur Reduzierung des Speicherplatzbedarfs und der Rechenzeit von SHDOM

Zur Durchführung weiterer Sensitivitätsstudien mit dem 3-dimensionalen Strahlungstransportmodell SHDOM wäre eine Reduktion sowohl des Speicherplatzbedarfs als auch der Rechenzeit von Vorteil.

Zur Beschleunigung der Rechenzeit des Strahlungstransportmodells SHDOM bietet sich eine intensivere Parallelisierung an, sofern Hochleistungsrechner mit einer hohen Anzahl an Prozessoren zur Verfügung stehen. Die Parallelisierung des SHDOM erfolgt momentan über die Wellenlängen. Um eine Reduktion der Rechenzeit zu erreichen müßte die Anzahl an Prozessoren größer als die Anzahl der Wellenlängen (133 Wellenlängenintervalle) sein.

Der Speicherplatzbedarf eines $50 \times 50 \times 100$ großen Modellgebietes, welches mit 8 Strömen in μ -Richtung und 16 Strömen in φ -Richtung gerechnet wird, beträgt 759 MB (ohne die notwendigen freien Speicherplatzkapazitäten für die adaptive Gitterverfeinerung). Bei dem im Zentralen Rechenzentrum der Universität Mainz (ZDV) vorhandenen Parallelrechner HP-Convex SPP2000 teilen sich 8 Prozessoren einen Hauptspeicherplatz von 2 GB. Es existieren drei dieser Knoten mit je acht Prozessoren auf dem verwendeten Rechner. Die 2 GB eines Knotens würde ein Modellgebiet von $80 \times 80 \times 100$ zulassen. Eine Parallelisierung über das räumliche Gitter würde die Möglichkeit eröffnen, dass durch die Aufteilung des Modellgebietes auf verschiedene Prozessoren und Knoten der Speicherplatzbedarf des einzelnen Prozessors reduziert würde, und somit größere Modellgebiete möglich wären.

Eine weitere Möglichkeit zur Reduzierung des Speicherplatzbedarfs und der Rechenzeit würde sich dadurch ergeben, dass die Anzahl der vertikalen Gitterzellen vermindert wird. Dies wäre beispielsweise dadurch zu realisieren, dass die Ergebnisse eines 1-dimensionalen Modells in hinreichendem Abstand oberhalb der Wolke als Eingabe für das 3-dimensionale Modell dienen würde. Die Ergebnisse des 1-dimensionalen Modells müssten den Bedeckungsgrad des Modellgebietes berücksichtigen, beispielsweise über die *IPSI*-Methode, welche oberhalb der Wolke zu relativ geringen Abweichungen führt. Wenn dadurch die Gitteranzahl in der Vertikalausdehnung um 10 bis 20 Zellen vermindert werden könnte, würde sich dadurch der Speicherplatzbedarf um 30 MB bis 120 MB reduzieren. Auch die Rechenzeit würde dadurch dramatisch kürzer werden.

Mit dem Ziel der Berechnung von Photodissoziationsfrequenzen würde auch die Verwendung der breitbandigen Berechnungsmethode von *Landgraf und Crutzen* (1998) zu einer deutlichen Verringerung der Rechenzeit führen. Dabei ist zur Bestimmung der atmosphärisch relevanten Photodissoziationsfrequenzen die Berechnung des aktinischen Flusses in lediglich acht Wellenlängenintervallen notwendig. Die Abweichung dieser parametrisierten Photodissoziationsfrequenzen von den spektral berechneten

Photodissoziationsfrequenzen ist für die in der Troposphäre relevanten Photodissoziationsfrequenzen deutlich kleiner 10% (*Landgraf, 1998*).

11.5 Evaluierung der 3-dimensionalen Strahlungstransportmodelle

Eine weitere sehr wichtige Aufgabe besteht in der Evaluierung der 3-dimensionalen Strahlungstransportmodelle. Ähnlich wie die 1-dimensionalen Modelle müssen auch die mehr-dimensionalen Modelle mit den verschiedensten Messungen in durchbrochener Bewölkung verglichen werden, um die Zuverlässigkeit der Strahlungstransportrechnungen zu dokumentieren.

Ein großes Problem dabei ist die hohe zeitliche und räumliche Variabilität der Wolken (vgl. Kapitel 8 und 9). Diese Variabilität entsteht auf Grund der dynamischen Prozesse in der Atmosphäre und wirkt sich sowohl auf eine Veränderung der Geometrie der Wolke als auch auf die Flüssigwasserverteilung innerhalb der Wolke aus. Eine Evaluierung der 3-dimensionalen Strahlungstransportmodelle müsste deshalb auf statistischen Beschreibungen der Wolkeneigenschaften beruhen. Dazu werden für die verschiedensten Wolkensituationen Messungen der makro- und mikrophysikalischen Eigenschaften der Wolke benötigt. Im Idealfall stehen für diese Messungen verschiedene Instrumente wie Boden-gestützte Radar- und LIDAR-Messungen, Flugzeug-gestützte LIDAR-Messungen, in-situ Messungen der Wolkentropfenverteilung und Satelliteninformationen zur Verfügung.

Die statistische Auswertung dieser Messdaten definiert Wolkensituationen, welche bestenfalls mit Flugzeug-gestützten Messungen der Strahlung (aktinischer Fluss, Strahlungsflussdichte oder auch Photodissoziationsfrequenzen) verglichen werden können.

Neben den Informationen über die Wolken sind auch Messungen zum Aerosolgehalt und der Ozonkonzentration der Atmosphäre notwendig, um die Extinktion in der Atmosphäre korrekt zu erfassen.

Sofern diese Messdaten zur Verfügung stehen, ist die Evaluierung der mehr-dimensionalen Strahlungstransportrechnungen mit den in dieser Arbeit vorgestellten Modellen durchführbar.

Symbole

| Symbol | Dimension | Bezeichnung |
|---------------------------|-----------------------------------|---|
| β_{abs} | $[\text{m}^{-1}]$ | Volumenabsorptionskoeffizient |
| $\beta_{\text{aer,skal}}$ | $[\text{m}^{-1}]$ | skalierter Volumenextinktionskoeffizient der Aerosolpartikel |
| β_{ext} | $[\text{m}^{-1}]$ | Volumenextinktionskoeffizient |
| $\beta_{\text{ext,aer}}$ | $[\text{m}^{-1}]$ | Volumenextinktionskoeffizient der Aerosolpartikel |
| $\beta_{\text{ext,wol}}$ | $[\text{m}^{-1}]$ | Volumenextinktionskoeffizient der Wolkentropfen |
| β_{sca} | $[\text{m}^{-1}]$ | Volumenstreukoeffizient |
| β_{ray} | $[\text{m}^{-1}]$ | Volumenstreukoeffizient der Rayleigh-Streuung |
| β_{O_3} | $[\text{m}^{-1}]$ | Volumenabsorptionskoeffizient von Ozon |
| β_{NO_2} | $[\text{m}^{-1}]$ | Volumenabsorptionskoeffizient von Stickstoffdioxid |
| δ | $[\text{°}]$ | Sonnendeklination |
| γ | [1] | Wachstumskoeffizient |
| ε | $[\text{‰}]$ | Löslichkeit des Aerosolpartikel |
| ε_i | $[\text{F m}^{-1}]$ | Dielektrizitätskonstante |
| ϑ | $[\text{°}]$ | Zenitwinkel |
| ϑ_0 | $[\text{°}]$ | Sonnenzenitwinkel |
| ϑ_1 | $[\text{°}]$ | maximaler Sonnenzenitwinkel, bei welchem direkte Strahlung den Boden erreicht |
| κ | $[\mu\text{m } \mu\text{m}^{-1}]$ | Wachstumsfaktor |
| λ | $[\text{nm}]$ | Wellenlänge |
| λ_{geo} | $[\text{°}]$ | geographische Länge |
| μ | [1] | Kosinus des Zenitwinkels |

| Symbol | Dimension | Bezeichnung |
|-----------------------------|--------------------------|--|
| μ_0 | [1] | Kosinus des Sonnenzenitwinkels |
| μ_i | [H m ⁻¹] | magnetische Permeabilität |
| ν | [s ⁻¹] | Frequenz |
| ξ | [1] | Volumenanteil Wasser im aufgequollenen Aerosolpartikel |
| ρ_0 | [kg m ⁻³] | Dichte des trockenen Aerosolpartikels |
| ρ_f | [kg m ⁻³] | Dichte des feuchten Aerosolpartikels |
| ρ_{NO_2} | [$\mu\text{g m}^{-3}$] | Dichte von Stickstoffdioxid |
| ρ_{O_3} | [$\mu\text{g m}^{-3}$] | Dichte von Ozon |
| σ_{abs} | [cm ²] | Absorptionsquerschnitt |
| $\sigma_{\text{aer},i}$ | [1] | Standardabweichung der Aerosolgrößenverteilung |
| σ_{ext} | [cm ²] | Extinktionsquerschnitt |
| σ_{dro} | [1] | Standardabweichung der Wolkentropfengrößenverteilung |
| σ_{ray} | [cm ²] | Streuquerschnitt der Rayleigh-Streuung |
| σ_{sca} | [cm ²] | Streuquerschnitt |
| σ_s | [1] | Standardabweichung |
| σ_{NO_2} | [cm ²] | Absorptionsquerschnitt von NO ₂ |
| σ_{O_3} | [cm ²] | Absorptionsquerschnitt von Ozon |
| τ | [1] | optische Dicke |
| τ_{aer} | [1] | optische Dicke des Aerosols |
| τ_{NO_2} | [1] | optische Dicke der Stickstoffdioxid-Absorption |
| τ_{O_3} | [1] | optische Dicke der Ozonabsorption |
| τ_{ray} | [1] | optische Dicke der Rayleigh-Streuung |
| τ_s | [1] | optische Dicke entlang des Strahlweges |
| τ_{wol} | [1] | optische Dicke der Wolke |
| φ | [°] | Azimutwinkel |
| φ_0 | [°] | Sonnenazimutwinkel |
| ϕ_i | [1] | Quantenausbeute |
| ϕ_s | [1] | osmotischer Koeffizient |
| ϕ_{geo} | [°] | geographische Breite |
| $\phi_{\text{NO}+\text{O}}$ | [1] | Quantenausbeute von NO ₂ nach NO und O |

| Symbol | Dimension | Bezeichnung |
|--|------------------------|---|
| $\phi_{\text{O}^{(1\text{D})}+\text{O}_2}$ | [1] | Quantenausbeute von O_3 nach $\text{O}^{(1\text{D})}$ und O_2 |
| ω | [1] | Stundenwinkel |
| $\tilde{\omega}$ | [1] | Einfachstreueralbedo |
| Θ | [°] | Streuwinkel |
| Γ | [K m ⁻¹] | trockenadiabatischer Temperaturgradient |
| Γ_{f} | [K m ⁻¹] | feuchtadiabatischer Temperaturgradient |
| $\vec{\Omega}$ | [sr] | Raumwinkel |
| $\vec{\Omega}_0$ | [sr] | solarer Einstrahlwinkel |
| a_{w} | [1] | Wasseraktivität |
| g | [1] | Asymmetrieparameter |
| g_{p} | [1] | Asymmetrieparameter eines einzelnen Partikels |
| m_0 | [kg] | Masse des trockenen Aerosolpartikels |
| m_{f} | [kg] | Masse des feuchten Aerosolpartikels |
| m_{w} | [kg] | Masse des Wassers |
| \bar{m}_{s} | [g mol ⁻¹] | molare Masse des löslichen Anteils des Aerosolpartikels |
| n | [1] | spektraler Brechungsindex |
| n_{p} | [1] | spektraler Brechungsindex von Partikeln |
| n_{rur} | [1] | spektraler Brechungsindex von ruralem Aerosol |
| n_{urb} | [1] | spektraler Brechungsindex von urbanem Aerosol |
| n_{was} | [1] | spektraler Brechungsindex von Wasser |
| \vec{n} | [1] | Normalenvektor |
| p | [hPa] | Luftdruck |
| p^{21} | [hPa] | Sättigungsdampfdruck über Wasser |
| p_i | [1] | Legendre-Koeffizienten |
| $p_{\text{ray},i}$ | [1] | Legendre-Koeffizienten der Rayleigh-Streuung |
| \vec{r} | [m] | Ortsvektor |
| r | [μm] | Partikelradius (Äquivalentradius) |
| r_{21} | [kg kg ⁻¹] | spezifische Feuchte |
| $r_{\text{aer},i}$ | [μm] | Modenradius der Aerosolpartikel |

| Symbol | Dimension | Bezeichnung |
|--------------------|---|---|
| r_{eff} | $[\mu\text{m}]$ | effektiver Radius |
| r_{f} | $[\mu\text{m}]$ | Radius der feuchten Aerosolpartikel |
| r_{m} | $[\mu\text{m}]$ | Modenradius |
| $r_{\text{v,aer}}$ | $[\mu\text{m}]$ | mittlerer Volumenradius der Aerosolpartikel |
| $r_{\text{v,dro}}$ | $[\mu\text{m}]$ | mittlerer Volumenradius der Wolkentropfen |
| r_{dro} | $[\mu\text{m}]$ | Modenradius der Wolkentropfenverteilung |
| r_{aer} | $[\mu\text{m}]$ | Modenradius der Aerosolverteilung |
| rh | $[\%]$ | relative Feuchte |
| $rh(z_0)$ | $[\%]$ | relative Feuchte am Boden |
| s | $[\text{m}]$ | Strahlweg |
| x | $[1]$ | Mie-Größenparameter |
| x_{c} | $[\text{m}]$ | horizontale Ausdehnung der Wolke |
| x_{g} | $[\text{m}]$ | horizontaler Abstand zwischen zwei Wolken |
| z | $[\text{m}]$ | Höhe |
| z_{c} | $[\text{m}]$ | vertikale Ausdehnung der Wolke |
| A_{d} | $[\text{m}^2]$ | Fläche unterhalb der Wolke, auf der direkte Strahlung auftrifft |
| A_{G} | $[1]$ | spektrale Bodenalbedo |
| A_{s} | $[\text{m}^2]$ | abgeschattete Fläche unterhalb der Wolke Strahlung auftrifft |
| B | $[\text{W m}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}]$ | spektrale Temperaturstrahlung |
| B_{w} | $[\%]$ | Bedeckungsgrad |
| E | $[\text{W m}^{-2}\text{nm}^{-1}]$ | spektrale Strahlungsflussdichte |
| \mathcal{E} | $[\text{W m}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}]$ | emittierte Strahlung |
| \vec{E} | $[\text{V m}^{-1}]$ | elektrischer Feldvektor |
| F_{act} | $[\text{W m}^{-2}\text{nm}^{-1}]$ | spektraler aktinischer Fluss |
| \vec{H} | $[\text{A m}^{-1}]$ | magnetischer Feldvektor |
| J | $[\text{s}^{-1}]$ | Photodissoziationsfrequenz |
| L | $[\text{W m}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}]$ | spektrale Strahldichte |
| N_{aer} | $[\text{cm}^{-3}]$ | Anzahlkonzentration Aerosolpartikel |
| N_{dro} | $[\text{cm}^{-3}]$ | Anzahlkonzentration Wolkentropfen |
| N_{Luft} | $[\text{cm}^{-3}]$ | Anzahlkonzentration Luftmoleküle |
| N_{NO_2} | $[\text{cm}^{-3}]$ | Anzahlkonzentration Stickstoffdioxidmoleküle |

| Symbol | Dimension | Bezeichnung |
|------------------|---|---|
| N_{O_3} | $[\text{cm}^{-3}]$ | Anzahlkonzentration Ozonmoleküle |
| N_{vap} | $[\text{cm}^{-3}]$ | Anzahlkonzentration Wasserdampfmoleküle |
| M_k | $[\text{m}^k]$ | k-tes Moment einer Verteilung |
| P_i | [1] | Legendre-Polynom |
| \mathcal{P} | [1] | Phasenfunktion |
| Q | $[\text{W m}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}]$ | spektrale Quelle der Strahldichte |
| Q_{ad} | $[\text{kg kg}^{-1}]$ | adiabatischer Flüssigwassergehalt |
| Q_{ext} | [1] | Extinktionseffizienz |
| Q_l | $[\text{g m}^{-3}]$ | Flüssigwassergehalt |
| Q_{sca} | [1] | Streueffizienz |
| S_0 | $[\text{W m}^{-2}\text{nm}^{-1}]$ | extraterrestrischer Fluss |
| S_n | [m] | Normalsichtweite |
| T | [K] | Temperatur |
| \mathcal{T} | [1] | Transmission |
| V_{tot} | $[\text{cm}^3]$ | Gesamtaerosolvolumen |
| W | $[\text{W m}^{-2}\text{nm}^{-1}]$ | zeitlich gemittelte elektromagnetische Energie innerhalb einer dielektrischen Kugel |

Physikalische Konstanten

| Konstante | Bezeichnung |
|---|--|
| $\rho_w = 1 \cdot 10^3 \text{ kgm}^{-3}$ | Dichte von Wasser |
| $\sigma_w = 76.1 \cdot 10^{-3} \text{ Nm}^{-1}$ | Oberflächenspannung von Wasser in Luft |
| $c = 2.99792 \cdot 10^8 \text{ ms}^{-1}$ | Lichtgeschwindigkeit im Vakuum |
| $c_{p0} = 1004 \text{ Jkg}^{-1}\text{K}^{-1}$ | spezifische Wärme trockener Luft |
| $h = 6.625 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$ | Plancksche Konstante |
| $k = 1.3804 \cdot 10^{-23} \text{ JK}^{-1}$ | Boltzmann-Konstante |
| $g_E = 9.81 \text{ ms}^{-2}$ | Schwerebeschleunigung |
| $\ell_{21} = 2.256 \cdot 10^6 \text{ Jkg}^{-1}$ | latente Verdampfungswärme |
| $\bar{m}_{\text{O}_3} = 48 \text{ gmol}^{-1}$ | molare Masse von Ozon |
| $\bar{m}_0 = 29 \text{ gmol}^{-1}$ | molare Masse von trockener Luft |
| $\bar{m}_w = 18 \text{ gmol}^{-1}$ | molare Masse von Wasser |
| $n_0 = 1$ | Brechungsindex von Luft |
| $N_A = 6.022045 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ | Avogadro-Konstante |
| $R_0 = 287.05 \text{ Jkg}^{-1}\text{K}^{-1}$ | Gaskonstante von trockene Luft |
| $R_w = 461.51 \text{ Jkg}^{-1}\text{K}^{-1}$ | Gaskonstante von Wasserdampf |

Literaturverzeichnis

- Bohren C. F. und D. R. Huffman: *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley and Sons, New York, 1983.
- Borde R. und H. Isaka: Radiative transfer in multifractal clouds. *J. Geophys. Res.*, **101**, 29 461–29 478, 1996.
- Bott A. und W. Zdunkowski: Electromagnetic energy within dielectric spheres. *J. Opt. Soc. Am. A*, **4**, 1361–1365, 1987.
- Bowker D. E., R. E. Davis, D. L. Myrick, K. Stacy und W. T. Jones: Spectral reflectance of natural targets for use in remote sensing studies. *Nasa Reference Publication*, *1139*, 1985.
- Brasseur G. und S. Solomon: *Aeronomy of the Middle Atmosphere*. D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 2. Aufl., 1986.
- Brenguier J. L.: Parameterization of the condensation process in small nonprecipitating cumuli. *J. Atmos. Sci.*, **47**, 1127–1148, 1990.
- Coley P. F. und P. R. Jonas: The influence of cloud structure and droplet concentration on the reflectance of shortwave radiation. *Ann. Geophysicae*, **14**, 845–852, 1996.
- Coley P. F. und P. R. Jonas: The contribution of cloud inhomogeneities and droplet concentration to the albedo of broken-cloud fields. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **123**, 1931–1944, 1997.
- Dahlback A. und K. Stamnes: A new spherical model for computing the radiation field available for photolysis and heating at twilight. *Planet. Space Sci.*, **39**, 671–683, 1991.
- Daumont D., J. Brion, J. Charbonnier und J. Malicet: Ozone UV spectroscopy I: Absorption cross-sections at room temperature. *J. Atmos. Chem.*, **15**, 145–155, 1992.
- d’Almeida G. A., P. Koepke und E. P. Shettle: *Atmospheric Aerosols. Global Climatology and Radiative Characteristics*. A. Deepak, Hampton, Va., 1991.
- DeMore W. B., S. P. Sander, C. J. Howard, A. R. Ravishankara, D. M. Golden, C. E. Kolb, R. F. Hampson, M. J. Kurylo und M. J. Molina: Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling. *JPL Publication 97-4*, 1997.

- Dickerson R. R., S. Kondragunta, G. Stenchikov, K. L. Civerolo, B. G. Doddridge und B. N. Holben: The impact of aerosols on solar ultraviolet radiation and photochemical smog. *Science*, **278**, 827–830, 1997.
- Duda D. P., G. L. Stephens, B. Stevens und W. R. Cotton: Effects of aerosol and horizontal inhomogeneity on the broadband albedo of marine stratus: Numerical simulations. *J. Atmos. Sci.*, **53**, 3757–3769, 1996.
- Eckstein E.: *Entwicklung eines 4π -Spektralradiometers zur Messung aktinischer Flüsse und Photolysefrequenzen bei unterschiedlichen Bewölkungssituationen*. Dissertation am Fachbereich Chemie der Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, 2000a.
- Eckstein E., B. Früh, T. Trautmann, C. Brühl, D. Perner: Measurements of actinic fluxes with a 4π spectroradiometer and comparison with respective simulations *J. Atmos. Chem.*, in Vorbereitung, 2000b.
- Evans K. F.: Two-dimensional radiative transfer in cloudy atmospheres: The spherical harmonics spatial grid method. *J. Atmos. Sci.*, **50**, 3111–3124, 1993.
- Evans K. F.: The spherical harmonics discrete ordinate method for three-dimensional atmospheric radiative transfer. *J. Atmos. Sci.*, **55**, 429–446, 1998.
- Erlick C., J. E. Frederick, V. K. Saxena und B. N. Wenny.: Atmospheric transmission in the ultraviolet and visible: Aerosols in cloudy atmospheres. *J. Geophys. Res.*, **103**, 31 541–31 556, 1998.
- Finlayson-Pitts, B. J. und J. N. Pitts Jr.: *Atmospheric Chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques*. John Wiley, New York, 1986.
- Früh B., T. Trautmann, M. Wendisch und A. Keil: Comparison of observed and simulated NO₂ photodissociation frequencies in a cloudless atmosphere and in continental boundary layer clouds. *J. Geophys. Res.*, **105**, 9843–9857, 2000a.
- Früh B., T. Trautmann und M. Wendisch: Measurement-based calculations of $J(\text{NO}_2)$ sensitivity to solar zenith angle, ground albedo, humidity and aerosol in a cloudless atmosphere. *Atmos. Environ.*, **34**, 5249–5254, 2000b.
- Graedel T. E. und P. J. Crutzen: *Chemie der Atmosphäre. Bedeutung für Klima und Umwelt*. Spektrum Akad. Verlag, Heidelberg, 1994.
- Hänel G.: The properties of atmospheric aerosol particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with the surrounding moist air. *Adv. Geophys.*, **19**, 73–188, 1976.
- Hale G. und M. Querry: Optical constants for water in the 200 nm to 200 μm wavelength region. *Appl. Opt.*, **12**, 555–563, 1973.
- Hignett P. und J. P. Taylor: The radiative properties of inhomogeneous boundary layer cloud: Observations and modelling. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **122**, 1341–1364, 1996.
- Iqbal, M.: *An Introduction to Solar Radiation*. Academic Press Toronto, 1983.

- Jackson, J. D.: *Klassische Elektrodynamik*. 2. Aufl., Walter der Gruyter, Berlin, 1983.
- Jaenicke, R.: Aerosol physics and chemistry. In: Landolt Börnstein, *Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik V/4b*, G. Fischer, Editor, Springer, 391–451, 1988.
- Joseph J. H., W. J. Wiscombe und J.A. Weinman: The Delta-Eddington approximation for radiative flux transfer. *J. Atmos. Sci.*, **33**, 2452–2459, 1976.
- Junkermann W., U. Platt und A. Volz-Thomas: A photoelectric detector for the measurement of photolysis frequencies of ozone and other atmospheric molecules. *J. Atmos. Chem.*, **8**, 203–227, 1989.
- Junkermann W., C. Brühl, D. Perner, E. Eckstein, T. Trautmann, B. Früh, R. Dlugi, T. Gori, A. Ruggaber, J. Reuder, M. Zeiger, A. Hofzumahaus, B. Bohn, A. Kraus, S. Mölders, F. Rohrer, D. Brüning, G. Moortgat: Actinic radiation and photolysis in the lower troposphere: Effect of clouds and aerosols *J. Atmos. Chem.*, eingereicht, 2000.
- Landgraf J.: *Modellierung photochemisch relevanter Strahlungsvorgänge in der Atmosphäre unter Berücksichtigung des Einflusses von Wolken*. Dissertation am Fachbereich Physik der Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, 1998.
- Landgraf J. und P. J. Crutzen: An efficient method for online calculations of photolysis and heating rates. *J. Atmos. Sci.*, **55**, 863–878, 1998.
- Lenoble J. und C. Brogniez: A comparative review of radiation aerosol models. *Beitr. Phys. Atmosph.*, **57**, 1–20, 1984.
- Lenoble J.: *Atmospheric Radiative Transfer*. A. Deepak Publishing, Hampton, Virginia, USA, 1993.
- Liao H., Y. L. Yung und J. H. Seinfeld: Effects of aerosol on tropospheric photolysis rates in clear and cloudy atmospheres. *J. Geophys. Res.*, **104**, 23 697–23 707, 1999.
- Liou K. N., Q. Fu und T. P. Ackermann: A simple formulation of the delta-four-stream approximation for radiative transfer parameterizations. *J. Atmos. Sci.*, **45**, 1940–1947, 1988.
- Liou K. N.: *Radiation and Cloud Processes in the Atmosphere*. Oxford University Press, New York, 1992.
- Madronich S.: Photodissociation in the atmosphere: 1. Actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. *J. Geophys. Res.*, **92**, 9740–9752, 1987.
- Madronich S. und G. Weller: Numerical integration errors in calculated tropospheric photodissociation rate coefficients. *J. Atmos. Chem.*, **10**, 289–300, 1990.
- Matthijssen J., K. Suhre, R. Rosset, F. L. Eisele, R. L. Mauldin III und D. J. Tanner: Photodissociation and UV radiative transfer in a cloudy atmosphere: Modeling and measurements. *J. Geophys. Res.*, **103**, 16 665–16 676, 1998.

- Mayer, B.: *Messung und Modellierung der spektralen UV-Bestrahlungsstärke in Garmisch-Partenkirchen*. Dissertation an der Fakultät für Mathematik und Naturwissenschaften der technischen Universität Ilmenau, 1996.
- Mayer B., A. Kylling, S. Madronich und G. Seckmeyer: Enhanced absorption of UV radiation due to multiple scattering in clouds: Experimental evidence and theoretical explanation. *J. Geophys. Res.*, **103**, 31 241-31 254, 1998.
- Mayer B., G. Seckmeyer und A. Kylling: Systematic long-term comparison of spectral UV measurements and UVSPEC modeling results. *J. Geophys. Res.*, **102**, 8755-8767, 1997.
- McClatchey R. A., R. W. Fenn, J. E. A. Selby, F. E. Volz und J. S. Garing: Optical properties of the atmosphere *AFCRL-71-0279, Environmental Research Papers, 354*, 1971.
- Mérienne M. F., A. Jenouvrier und B. Coquart: The NO₂ absorption spectrum. I: Absorption cross-sections at ambient temperature in the 300-500 nm region. *J. Atmos. Chem.*, **20**, 281-297, 1995.
- Meier R. R., G. P. Anderson, C. A. Cantrell, L. A. Hall, J. Lean, K. Minschwaner, R. E. Shetter, E. P. Shettle und K. Stamnes: Review Paper. Actinic radiation in the terrestrial atmosphere. *J. Atmos. Terr. Phys.*, **59**, 2111-2157, 1997.
- Michelangioli D. V., M. Allen, Y. L. Yung, R. Shia, D. Crisp und J. Eluszkiewicz: Enhancement of atmospheric radiation by an aerosol layer. *J. Geophys. Res.*, **97**, 865-874, 1992.
- Mishchenko M. I., A. A. Lacis, B. E. Carlson und L. D. Travis: Nonsphericity of dust-like tropospheric aerosols: Implications for aerosol remote sensing and climate modeling. *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 1077-1080, 1995.
- Molina L. T. und M. J. Molina: Absolute absorption cross sections of ozone in the 185- to 350-nm wavelength range. *J. Geophys. Res.*, **91**, 14 501-14 508, 1986.
- Mütze K., L. Foitzik, W. Krug und G. Schreiber: *ABC der Optik*. Verlag Werner Dausien, Hanau/Main, 1961.
- Nicolet M.: On the molecular scattering in the terrestrial atmosphere: An empirical formula for its calculation in the homosphere. *Planet. Space Sci.*, **32**, 1467-1468, 1984.
- Naus H. und W. Umbachs: Visible absorption bands of the (O₂)₂ collision complex at pressures below 760 torr. *Appl. Opt.*, **38**, 3423-3428, 1999.
- Pruppacher H. R. und J. D. Klett: *Microphysics of Clouds and Precipitation*. 2. Aufl., Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1997.
- Ravishankara A. R., G. Hancock, M. Kawasaki und Y. Matsumi: Photochemistry of ozone: Surprises and recent lessons. *Science*, **280**, 60-61, 1998.

- Reuder J. und H. Schwander: Aerosol effects on UV radiation in nonurban regions. *J. Geophys. Res.*, **104**, 4065–4077, 1999.
- Rogers R. R. und M. K. Yau: *A Short Course in Cloud Physics*. Pergamon Press, Oxford, UK, 1989.
- Ruggaber A., R. Dlugi und T. Nakajima: Modelling radiation quantities and photolysis frequencies in the troposphere. *J. Atmos. Chem.*, **18**, 171–210, 1994.
- Ruggaber A., R. Dlugi, A. Bott, R. Forkel, H. Herrmann und H.-W. Jacobi: Modelling of radiation quantities and photolysis frequencies in the aqueous phase in the troposphere. *Atmos. Environ.*, **31**, 3137–3150, 1997.
- Shettle E. P. und R. W. Fenn: Models for the aerosols of the lower atmosphere and the effect of humidity variations on their optical properties. *AFGL-TR-79-0214, Environmental Research Papers*, 676, 1979.
- Slingo A. und H. M. Schrecker: On the shortwave radiative properties of stratiform water clouds. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **108**, 407–426, 1982.
- Stamnes K., S. Tsay, W. Wiscombe und K. Jayaweera: Numerically stable algorithm for discrete-ordinate-method radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media. *Appl. Opt.*, **27**, 2502–2509, 1988.
- Stephens G. L.: Radiation profiles in extended water clouds. I: Theory. *J. Atmos. Sci.*, **35**, 2111–2122, 1978.
- Talukdar R. K., C. A. Longfellow, M. K. Gilles und A. R. Ravishankara: Quantum yields of O(¹D) in the photolysis of ozone between 289 and 329 nm as a function of temperature. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 143–146, 1998.
- Trautmann T., I. Podgorny, J. Landgraf und P. J. Crutzen: Actinic fluxes and photodissociation coefficients in cloud fields embedded in realistic atmospheres. *J. Geophys. Res.*, **104**, 30 173–30 192, 1999.
- Trautmann T., H. Walter und J. Landgraf: Actinic fluxes and Photodissoziationsfrequenzen von NO₂ ($J(\text{NO}_2)$) für sehr große solare Zenithwinkel: Vergleich von zwei radiativen Transfer-Codes. *IRS2000 Publication*, eingereicht, 2000.
- van de Hulst H. C.: *Multiple Light Scattering*. Vol. 2, Academic Press, New York, 1980.
- VanHoosier M.: The solar spectrum is available by ftp from ftp://susim.nrl.navy.mil/pub/atlas3. Naval Research Laboratory, Washington, D.C., 1996.
- van Weele M. und P. G. Duynkerke: Effect of clouds on the photodissociation of NO₂: Observations and modelling. *J. Atmos. Chem.*, **16**, 231–255, 1993.
- Vilà-Guerau de Arellano J., P. G. Duynkerke und M. van Weele: Tethered-balloon measurements of actinic flux in a cloud-capped marine boundary layer. *J. Geophys. Res.*, **99**, 3699–3705, 1994.

- Volz-Thomas A., A. Lerner, H.-W. Pätz, M. Schultz, D. S. McKenna, R. Schmitt, S. Madronich und E. P. Röth: Airborne measurements of the photolysis frequency of NO₂. *J. Geophys. Res.*, **101**, 18 613–18 627, 1996.
- Weihls P. und A. R. Webb: Accuracy of spectral UV model calculations. 2. Comparison of UV calculations with measurements. *J. Geophys. Res.*, **102**, 1551–1560, 1997.
- Wendisch M., S. Mertes, A. Ruggaber und T. Nakajima: Vertical profiles of aerosol and radiation and the influence of a temperature inversion: Measurements and radiative transfer calculations. *J. Appl. Meteor.*, **35**, 1703–1715, 1996.
- Wendisch, M., S. Mertes, J. Heintzenberg, A. Wiedensohler, D. Schell, W. Wobrock, G. Frank, B. G. Martinsson, S. Fuzzi, G. Orsi, G. Kos und A. Berner: Drop size distribution and LWC in Po Valley fog. *Beitr. Phys. Atmosph.*, **71**, 87–100, 1998.
- Wendisch M. und A. Keil: Discrepancies between measured and modeled solar and UV radiation within polluted boundary layer clouds. *J. Geophys. Res.*, **104**, 27 373–27 385, 1999.
- Woods T. N., D. K. Prinz, G. J. Rottman, J. London, P. C. Crane, R. P. Cebula, E. Hilsenrath, G. E. Brueckner, M. D. Andrews, O. R. White, M. E. VanHoosier, L. E. Floyd, L. C. Herring, B. G. Knapp, C. K. Pankratz und P. A. Reiser: Validation of the UARS solar ultraviolet irradiances: Comparison with the ATLAS 1 and 2 measurements. *J. Geophys. Res.*, **101**, 9541–9569, 1996.
- World Meteorological Organization (WMO): *Atmospheric Ozone 1985, Report 16*. Global Ozone Research and Monitoring Project, Genf, 1986.
- Wurzler S., P. Respondek, A. I. Flossmann und H. R. Pruppacher: Simulation of the dynamics, microstructure and cloud chemistry of a precipitating and a non-precipitating cloud by means of a detailed 2-D cloud model. *Beitr. Phys. Atmosph.*, **67**, 313–319, 1994.
- Zdunkowski W., R. M. Welch und G. Korb: An investigation of the structure of typical two-stream-methods for the calculation of solar fluxes and heating rates in clouds. *Beitr. Phys. Atmosph.*, **53**, 147–166, 1980.
- Zdunkowski W., W. G. Panhans, R. M. Welch und G. Korb: A radiation scheme for circulation and climate models. *Beitr. Phys. Atmosph.*, **55**, 215–238, 1982.