

Ein chemisch-mikrophysikalisches Nebelmodell zur Beschreibung der Feuchtdeposition von Aerosolen und atmosphärischen Spurenstoffen im Pflanzenbestand

—

Abschlußbericht

Andreas Bott

Meteorologisches Institut,
Universität Bonn,
Auf dem Hügel 20
D-53121 Bonn
e-mail: a.bott@uni-bonn.de

Tanja Winterrath

Institut für Physik der Atmosphäre,
Johannes Gutenberg-Universität,
Becherweg 21, D-55099 Mainz,
e-mail: winterra@mail.uni-mainz.de

LPS-Nr.: F7 1050

Förderschwerpunkt: Atmosphärische Aerosolforschung (AFS)

Arbeitsgruppe III., Modellierung

Förderkennzeichen: 07 AF 301

1 Projektbeschreibung

Vegetation und Atmosphäre unterliegen ständigen Wechselwirkungsprozessen. Diese umfassen Einflüsse der Vegetation auf die meteorologischen Parameter wie Wind, Temperatur, Feuchte und das Strahlungsfeld, aber auch die Deposition von Aerosolpartikeln und Spurengasen sowie deren Emission durch die Pflanzen. Die Deposition von Nebeltropfen stellt eine effektive Senke für atmosphärische Spurengase und Aerosolpartikel in der planetaren Grenzschicht dar. Neben der Feuchtdeposition modifiziert Nebel sowohl die Trockendeposition als auch die Emissionen über die Benetzung der Pflanzenoberflächen. Darüberhinaus kann sich durch chemische Prozesse in Tropfen und Wasserfilmen ein niedriger pH-Wert ausbilden (Stichwort „Saurer Nebel“).

Um die beschriebenen Effekte zu untersuchen, wurde im Rahmen dieses Projektes ein eindimensionales Strahlungsnebelmodell entwickelt, welches die Wechselwirkung zwischen Atmosphäre und Biosphäre, sowie die Multiphasenchemie während eines Nebelereignisses beschreibt. Die größen aufgelöste Darstellung der Aerosolpartikel und Nebeltropfen ermöglicht eine detaillierte mikrophysikalische Behandlung der beschriebenen Prozesse. Darüberhinaus wird die zeitliche Entwicklung des Blattoberflächenwasser prognostisch beschrieben. Die Berechnung der Flüssigphasenchemie erfolgt in drei Größenklassen der Nebeltropfen und im Blattflächenwasser.

Photolysefrequenzen werden mit Hilfe eines Strahlungstransportmoduls unter Berücksichtigung des Einflusses der Vegetation berechnet. Der modulare Aufbau sowie die Strukturierung des Chemiemoduls unter Verwendung einer Pre-Processing-Methode gewährleisten eine hohe Flexibilität des Modells.

Das komplette Modell ermöglicht die Simulation von Strahlungsnebelereignissen. Sensitivitätsstudien ermöglichen die qualitative und quantitative Beschreibung der Deposition von Nebeltropfen, Aerosolpartikeln und Spurengasen auf die Vegetationsoberflächen. Die chemische Charakterisierung des Deponats, insbesondere im Hinblick auf den pH-Wert, ist ein wichtiger Bestandteil dieser Untersuchungen. Desweiteren ist eine Charakterisierung der Quellen- bzw. Senkenwirkung des Vegetationsbestandes für das atmosphärische Aerosol sowie die atmosphärischen Spurengase der planetaren Grenzschicht möglich.

Der Einfluß der Vegetation auf die Trockendeposition und die primären Spurengasemissionen, insbesondere der Einfluß des Blattflächenwassers, wurde untersucht.

Der detaillierte Arbeitsplan und der Ablauf des Projektes waren folgendermaßen:

1. Entwicklung eines Vegetationsmoduls und Kopplung des bereits vorhandenen mikrophysikalischen Nebelmodells MIFOG (MICROPHYSICAL FOG model) mit dem Vegetationsmodul (→ MIFOG_V)
2. Kopplung von MIFOG_V und einem bestehenden Chemiemodul (→ CHEMIFOG_V)
3. Umstrukturierung des Chemiemoduls unter Verwendung des KPP-Algorithmus (Kinetic Pre Processor, [Damian-Iordache, 1996](#))

4. Erneuerung des Gasphasenchemiemoduls (u. a. MIM, [Pöschl et al., 2000](#))
5. Erneuerung des Flüssigphasenchemiemoduls (CAPRAM2.3, [Herrmann et al., 2000](#))
6. Kopplung und Erweiterung eines Photolysemoduls ([Landgraf und Crutzen, 1998](#))
7. Erweiterung des Chemiemoduls um Chemie in nicht-aktivierten, gequollenen Aerosolpartikeln ([Luo et al., 1995](#)[Pitzer, 1991](#))
8. Kopplung eines Trockendepositionsmoduls ([Ganzeveld und Lelieveld, 1995](#))
9. Kopplung eines Emissionsmoduls ([Geron et al., 1994](#)[Günther et al., 1995](#)[Yienger und Levy II, 1995](#))
10. Durchführung von Studien und Publikation der Ergebnisse

2 Das gekoppelte Modell CHEMIFOG_V

Die folgenden Unterkapitel beziehen sich auf die vorangegangenen Punkte des Arbeitsplans.

2.1 Das Nebelmodell (zu Punkt 1)

Das eindimensionale Nebelmodell MIFOG ([Bott et al., 1990](#)) beschreibt die Dynamik, Thermodynamik und Mikrophysik eines Nebelereignisses, sowie den Strahlungstransport in der gesamten Atmosphäre. Hierzu werden prognostische Gleichungen gelöst, die im folgenden näher erläutert werden.

2.1.1 Die prognostischen Gleichungen

Das Nebelmodell löst die prognostischen Gleichungen für die

- zwei horizontalen Windgeschwindigkeitskomponenten (u, v), deren zeitliche Änderung durch
 - einen Turbulenzterm,
 - die Druckgradientenkraft und
 - den Corioliseffekt
 bestimmt wird;
- spezifische Feuchte, deren zeitliche Änderung durch
 - die turbulente Durchmischung von Wasserdampf und
 - die Kondensation bzw. Evaporation

bestimmt wird;

- potentielle Temperatur, deren zeitliche Änderung durch
 - turbulente Durchmischung,
 - Strahlungserwärmung und
 - Freisetzung latenter Wärme

bestimmt wird.

2.1.2 Die Turbulenz

Die Turbulenz wird in diesem Modell nach einem Schließungsmodell 1,5ter Ordnung behandelt, in dem die turbulenten Flüsse über K-Austauschkoeffizienten parametrisiert werden.

Für die turbulente kinetische Energie wird eine prognostische Gleichung gelöst, die

- die Produktion aufgrund vertikaler Scherung,
- die Produktion aufgrund thermischer Instabilität,
- die kontinuierliche Dissipation und
- den turbulenten Transport

beschreibt.

2.1.3 Die Mikrophysik

Eine wichtige Eigenschaft des Nebelmodells MIFOG ist die detaillierte Behandlung der Mikrophysik. Da die Wachstumseigenschaften der Nebeltropfen von ihrer Größe und vom Aerosolgehalt abhängen, wird das Tropfenspektrum mit Hilfe einer zweidimensionalen Funktion $f(a,r)$ beschrieben. Hierbei sind a der Radius des Aerosolpartikels, welches als Kondensationskeim dient, und r der Radius des Tropfens.

Die prognostische Gleichung für das Partikelspektrum berücksichtigt

- den vertikalen turbulenten Austausch,
- die Sedimentation und
- das Kondensationswachstum der Teilchen.

2.1.4 Der Boden

Im Bodenmodul werden prognostische Gleichungen für die Wärme und die Feuchtigkeit gelöst, die als Randwerte in das atmosphärische Modell eingehen.

2.1.5 Die Strahlung

Als Strahlungsmodul wird ein Zwei-Strom-Verfahren verwendet. Die Strahlungsberechnungen werden in 6 solaren und 12 infraroten Wellenlängenbereichen durchgeführt.

2.2 Das Vegetationsmodell (1)

Das Vegetationsmodell MIFOG_V (von Glasow und Bott, 1999) beschreibt die Einflüsse von Vegetation auf die Atmosphäre und damit Nebelbildung. Die hohe Vegetation wird durch eine vertikal aufgelöste Vegetationslage beschrieben. Im folgenden werden die durchgeführten Erweiterungen des Modells MIFOG, die zur Entwicklung des Modells MIFOG_V führten, erläutert.

Die Vegetation muß in den beschriebenen prognostischen Gleichungen folgendermaßen berücksichtigt werden.

- Die Vegetation übt auf die horizontalen Windkomponenten (u , v) einen Widerstand aus, der in den prognostischen Gleichungen für u und v berücksichtigt werden muß.
- Die prognostische Gleichung für Feuchte wird um einen Quellterm erweitert, der den Evapotranspirationsfluß zwischen der Vegetation und der Umgebungsluft beschreibt. Das Wasser, welches zur Transpiration zur Verfügung ist, wird dem Boden in der Wurzelzone entzogen.
- Die prognostische Gleichung für Wärme wird um einen Quellterm erweitert, der den Wärmeaustausch zwischen der Vegetation und der Umgebungsluft empirisch beschreibt.
- Die Gleichung für die turbulente kinetische Energie wird um einen Produktions-term erweitert, der die Entstehung von Turbulenz in der Vegetation beschreibt. Zur Berechnung der Mischungsweglänge, die von der Beschaffenheit des Untergrunds abhängt, muß die Höhe der Vegetation berücksichtigt werden.

2.2.1 Der Boden

Im Bodenmodell wird die Wurzelzone berücksichtigt, eine Schicht, aus der bei Transpiration instantan das benötigte Wasser entzogen wird.

2.2.2 Die Strahlung

Bei der Berechnung der Strahlung muß der Einfluß der Vegetation berücksichtigt werden. Dieses geschieht durch die Berücksichtigung der optischen Dicke der Vegetation in den relevanten Höhenschichten.

2.2.3 Die Mikrophysik

Die prognostische Gleichung für die Partikelverteilungsfunktion $f(a,r)$ muß um zwei weitere Abscheidungsprozesse erweitert werden:

- die Abscheidung auf Blattflächen durch Sedimentation und
- die Abscheidung auf Blattflächen durch Impaktion, also ausgehend von vertikalen Bewegungen.

Um den ersten Punkt zu gewährleisten, muß der bereits vorhandene Sedimentationsterm in der Weise erweitert werden, daß in den Vegetationsschichten abhängig von Bedeckungsgrad und Blattflächenindex Partikel und Tropfen abgeschieden werden.

Die Impaktion erzwingt die Berücksichtigung eines zusätzlichen empirischen Terms, der eine Abhängigkeit von der Stokes-Zahl, der horizontalen Windgeschwindigkeit und charakteristischer Vegetationsparameter zeigt.

2.3 Das Chemiemodul (2)

Das Modell MIFOG_V wurde mit dem Chemiemodul des Modells CHEMIFOG von [Bott und Carmichael \(1993\)](#) gekoppelt.

2.4 Die Umstellung auf KPP (3)

Um eine hohe Flexibilität des Modells zu erreichen, wurde eine komplette Umstrukturierung des Chemiemoduls vorgenommen, die im folgenden ausführlicher beschrieben wird. Das alte Modul diente dabei als Grundlage.

Mit Hilfe des KPP-Algorithmus ist es möglich, Chemiemodule zu generieren, die an das bestehende Modell angekoppelt werden. Unter Vorgabe der Chemie, eines geeigneten numerischen Solvers und eines Treibers, der die Kopplung zum Hauptmodell, sowie die Dachroutine für das Chemiemodell bildet, erstellt die KPP-Software den benötigten Code. Chemische Substanzen, Reaktionen und kinetische Daten werden in Tabellenform eingelesen. Aus diesem Grund ist eine Aktualisierung bzw. Erweiterung des Chemiemoduls in Zukunft einfach über die Änderung der Tabelle und anschließenden Aufruf des KPP's möglich. Ein Eingriff des Benutzers in die Software wird somit überflüssig.

2.5 Gasphasenchemie (4)

Um die Chemie in bewaldeter Umgebung beschreiben zu können, wurde ein C2-Gasphasenmechanismus erstellt. Das Gasphasenschema wurde durch Kopplung des Mainzer Isopren-Modells (MIM) zusätzlich um Isoprenchemie erweitert ([Pöschl et al., 2000](#)).

2.6 Flüssigphasenchemie (5)

In der Modellierung von Wechselwirkungen zwischen Atmosphäre und Biosphäre spielen organische Spurenstoffe eine wichtige Rolle. Aus diesem Grund wurde die Flüssigphasenchemie auf die umfassende Flüssigphasenchemie CAPRAM2.3 (Herrmann et al., 2000) umgestellt. CAPRAM2.3 berücksichtigt alle relevanten organischen Verbindungen bis C2. Insgesamt sind 41 neutrale Spezies und 38 Ionen in 235 Reaktionen berücksichtigt. Der CAPRAM2.3-Zyklus wird sowohl in den drei Tropfenklassen als auch in den Wassertropfen auf den Vegetationsoberflächen gerechnet.

2.7 Photolyse (6)

Um eine Verbesserung der Berechnung der Photolysefrequenzen zu erreichen, wurde ein Photolysemodell (Landgraf und Crutzen, 1998) gekoppelt und um die explizite Berechnung der Photolysefrequenzen innerhalb des Vegetationsbestandes erweitert.

2.8 Aerosolchemie (7)

Um die chemischen Reaktionen in den gequollenen, nicht-aktivierten Aerosolpartikeln beschreiben zu können, müssen nicht-ideale Prozesse in der Flüssigphase berücksichtigt werden. Hierzu wurde das Modell um eine weitere Partikelgrößenklasse erweitert, sowie ein Modul zur Berechnung der Aktivitätskoeffizienten gekoppelt und erweitert. Das verwendete Modul von Luo et al. (1995) basiert auf der halb-empirischen Theorie von Pitzer (1991).

2.9 Trockendeposition (8)

Ein wichtiges Ziel des Modells ist die qualitative und quantitative Charakterisierung der Feuchtdeposition von Nebeltropfen auf Vegetation. Zu diesem Zweck ist eine realistische Repräsentation der Chemie im Bereich der Vegetation von großer Wichtigkeit. Hierzu zählt neben einem guten Chemiemodul, welches die Multiphasenchemie der Atmosphäre beschreibt, auch ein Modul zur Berechnung der Trockendeposition von Gasen auf Vegetationsoberflächen und Boden. Die Depositionsgeschwindigkeiten auf heterogenen Oberflächen wie z. B. Wäldern gegenüber denen auf vegetationslosem Terrain können um ein Vielfaches erhöht sein. Aufgrund der Kopplung von Chemie und Vegetation, mußte das Trockendepositionsschema vollständig erneuert werden. Hierzu wurde in Zusammenarbeit mit dem Institute for Marine and Atmospheric research Utrecht (IMAU) in den Niederlanden, ein Mehrfach-Schichten-Modell zur Beschreibung von Trockendeposition in Vegetation an das Modell CHEMIFOG_V angepaßt und gekoppelt (Ganzeveld und Lelieveld, 1995). Trockendeposition auf feuchte Oberflächen wird über das Chemiemodul explizit berücksichtigt.

2.10 Emission (9)

Die Emission von NO aus dem Boden wird nach Yienger und Levy II (1995) beschrieben.

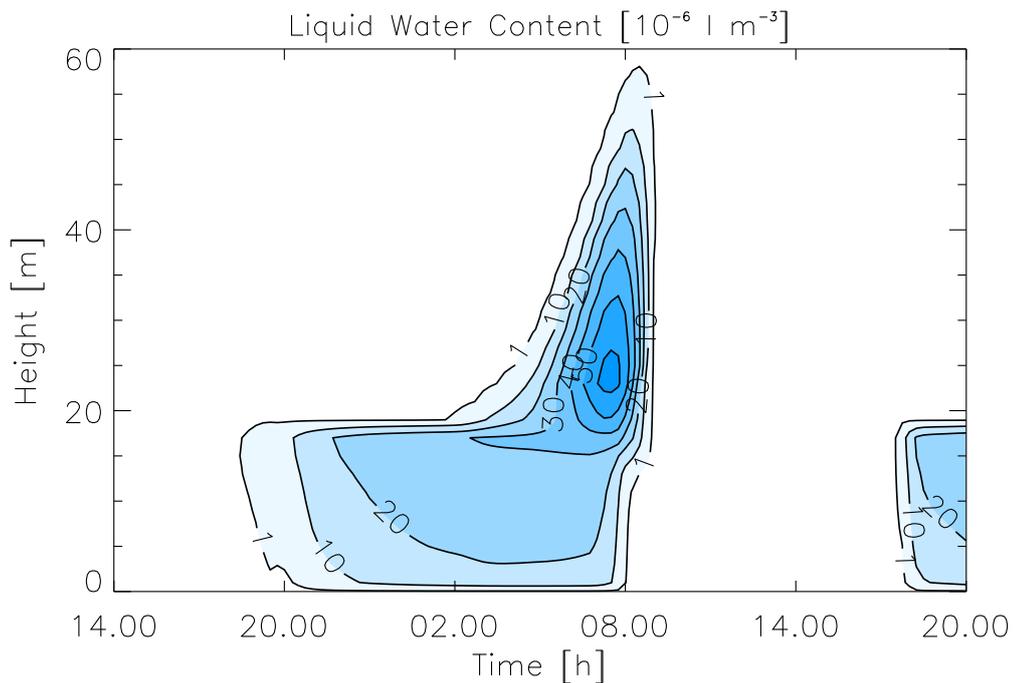


Abbildung 1: Zeitliche Entwicklung des Flüssigwassergehalts während eines Strahlungsnebelereignisses.

Die Vegetation emittiert Isopren. Die Stärke der Emission ist dabei abhängig vom Vegetationstyp, sowie der einfallenden Strahlung und der Blattemperatur (Geron et al., 1994; Günther et al., 1995).

2.11 Simulationsergebnisse (10)

2.11.1 Nebelentwicklung

Abbildung 1 zeigt den Flüssigwassergehalt während eines Strahlungsnebelereignisses in Abhängigkeit von Höhe und Zeit. Auffallend ist die Konzentration des Nebels in der Vegetationsschicht, insbesondere im dichten Kronenbereich. Die Entwicklung des Nebels kann in drei Stufen unterteilt werden:

- Bei Sonnenuntergang führt die Strahlungskühlung in den oberen Vegetationsschichten zum Quellen und Aktivieren von Aerosolpartikeln. Der Nebel beschränkt sich zunächst auf die Vegetationsschichten.
- Nach einigen Stunden breitet sich der Nebel vertikal aus.
- Nach Sonnenaufgang beginnt die Auflösung des Nebels in den unteren Schichten. Der Nebel steigt in der Grenzschicht auf.

Es wurden eine Reihe von Sensitivitätsstudien zur Untersuchung des Einflusses verschiedener Parameter auf die Entwicklung von Strahlungsnebel durchgeführt. Folgende Ergebnisse wurden dabei erzielt:

- Der Vegetationsbedeckungsgrad
 - Während sich ohne Vegetation, vertikal ausgebreiteter Nebel bildet, ist dieses bei Vegetation, wie oben bereits beschrieben, stärker auf die Vegetationsschichten konzentriert. Eine Erhöhung des Bedeckungsgrades führt dabei zu einer Verdünnung des Nebels.
 - Aufgrund der Wärme- und Feuchteflüsse bewirkt Vegetation ein Wachstum der Grenzschicht.
- Der Blattflächenindex
 - Die Dichte der Vegetation hat Einfluß auf die turbulenten Flüsse. Dichte Vegetation unterdrückt turbulenten Transport.
 - Die Abscheidungsraten erhöhen sich bei dichter Vegetation aufgrund der größeren Blattoberfläche.
- Die Initialisierungsfeuchte besitzt signifikanten Einfluß auf die Höhe und den Flüssigwassergehalt des sich bildenden Nebels und damit auf die Depositionsraten.
- Der stomatäre Widerstand reguliert die Transpiration von Pflanzen und beeinflusst somit den Feuchtefluß in der Vegetation. Die Untersuchungen zeigen, daß die Nebelbildung entscheidend vom Vegetationstyp abhängt.
- Der Aerosoltyp
 - Die Anzahldichte der Aerosolpartikel, die als Kondensationskeim dienen, bestimmt die Dichte des Nebels.
 - Die Absorptionseigenschaften der Aerosolpartikel beeinflussen zusätzlich den Strahlungshaushalt und damit sowohl die Nebelbildung als auch die Höhe der Grenzschicht.

2.11.2 Feuchtdeposition

Die Nebeltropfen unterliegen zwei Depositionsprozessen. Zum einen werden die Partikel aufgrund der Dynamik im Vegetationsbestand impaktiert, zum anderen sedimentieren die Tropfen. Aufgrund dieser Feuchtdeposition wird die Aerosolmasse in der planetaren Grenzschicht signifikant reduziert. In [Abbildung 2](#) sind die Aerosolmassenspektren zu Beginn der Simulation, zu drei Zeitpunkten während des Nebels und nach dem Nebelereignis, wenn die morgendliche turbulente Durchmischung bereits stattgefunden hat, dargestellt. Man erkennt eine deutliche Abnahme der Aerosolmassenkonzentration. Die zwischenzeitliche

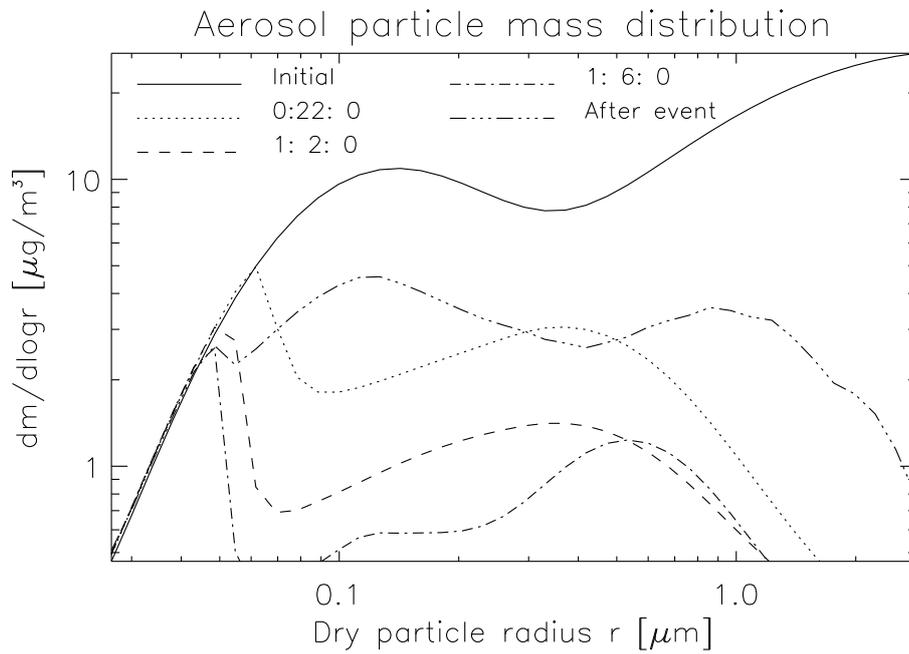


Abbildung 2: Aerosolmassenspektrum für verschiedene Zeitpunkte vor, während und nach dem Nebelereignis.

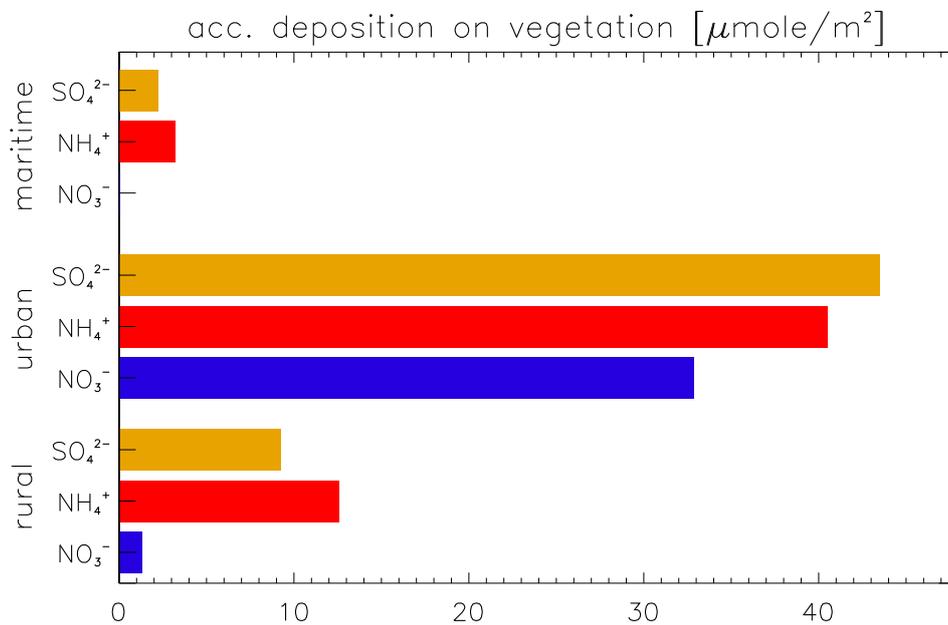
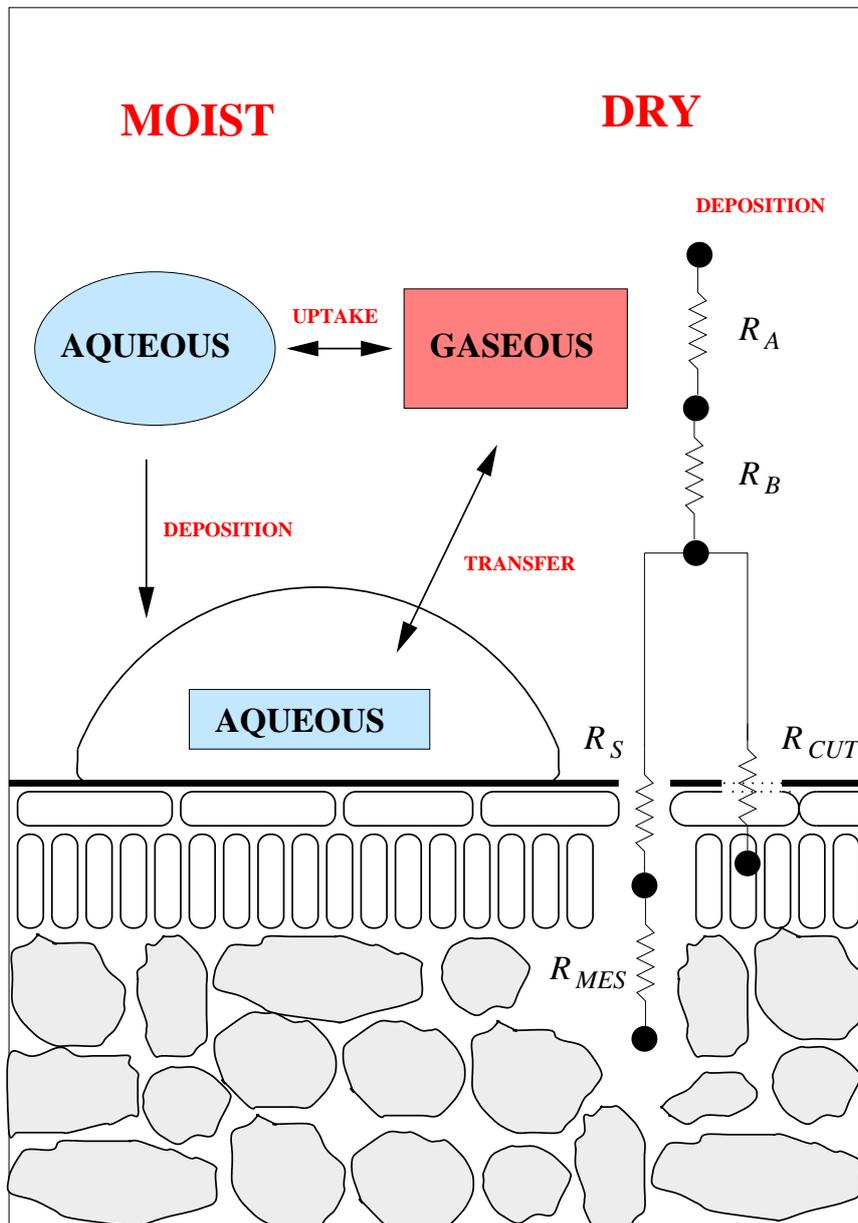
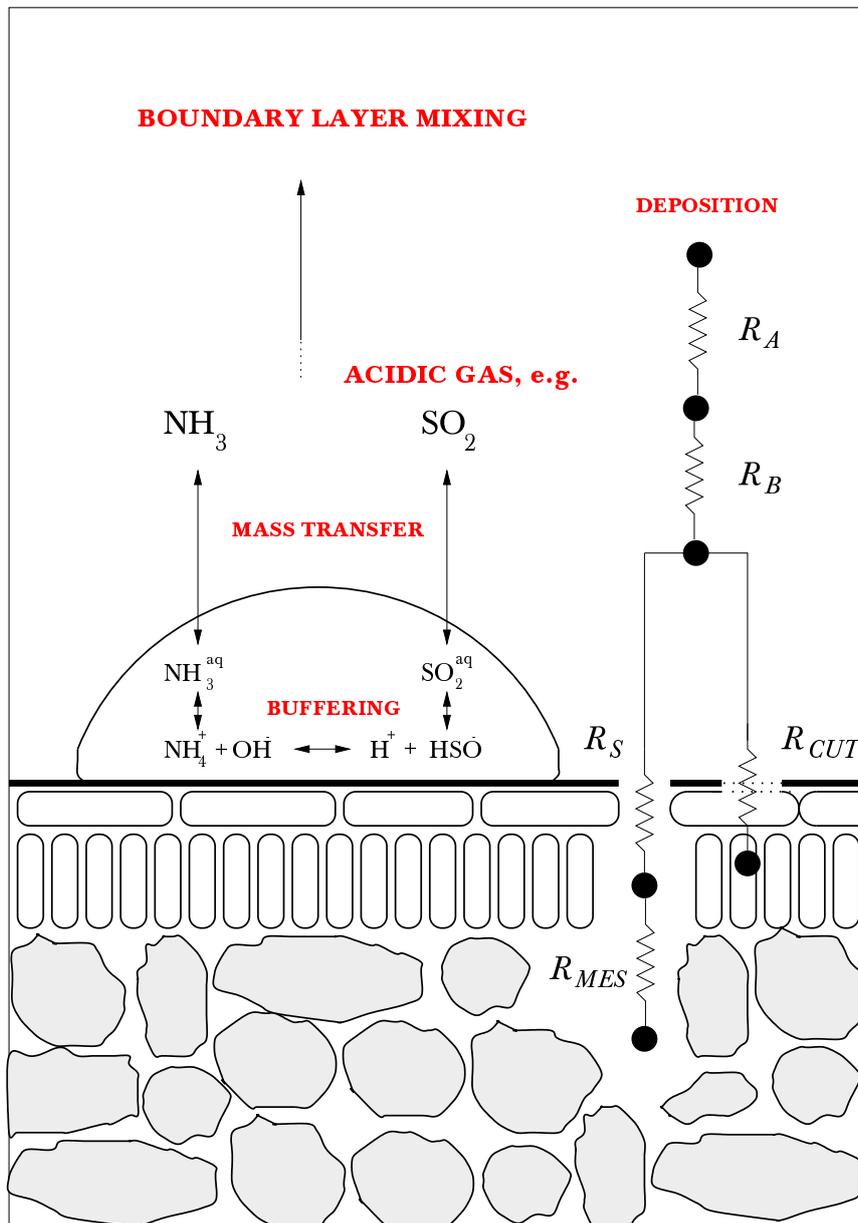


Abbildung 3: Anteile der häufigsten Ionen im akkumulierten Deponat.



(after Flechard et. al)

Abbildung 4: Depositionsprozesse in CHEMIFOG_V.



(after Flechard et. al)

Abbildung 5: Puffereffekt bei der Deposition von NH_3 .

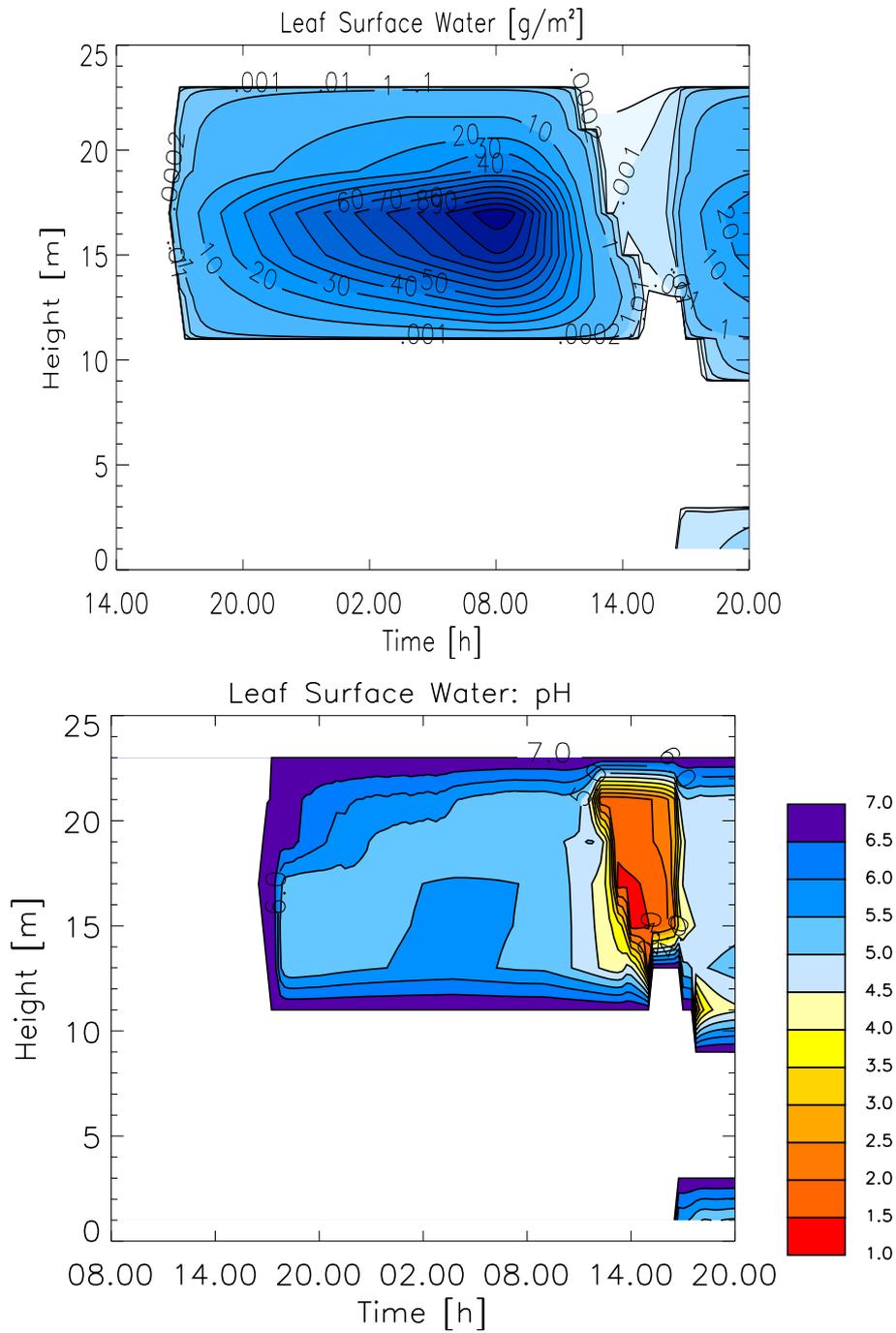


Abbildung 6: Deponiertes Flüssigwasser (oben); pH-Wert des deponierten Wassers(unten).

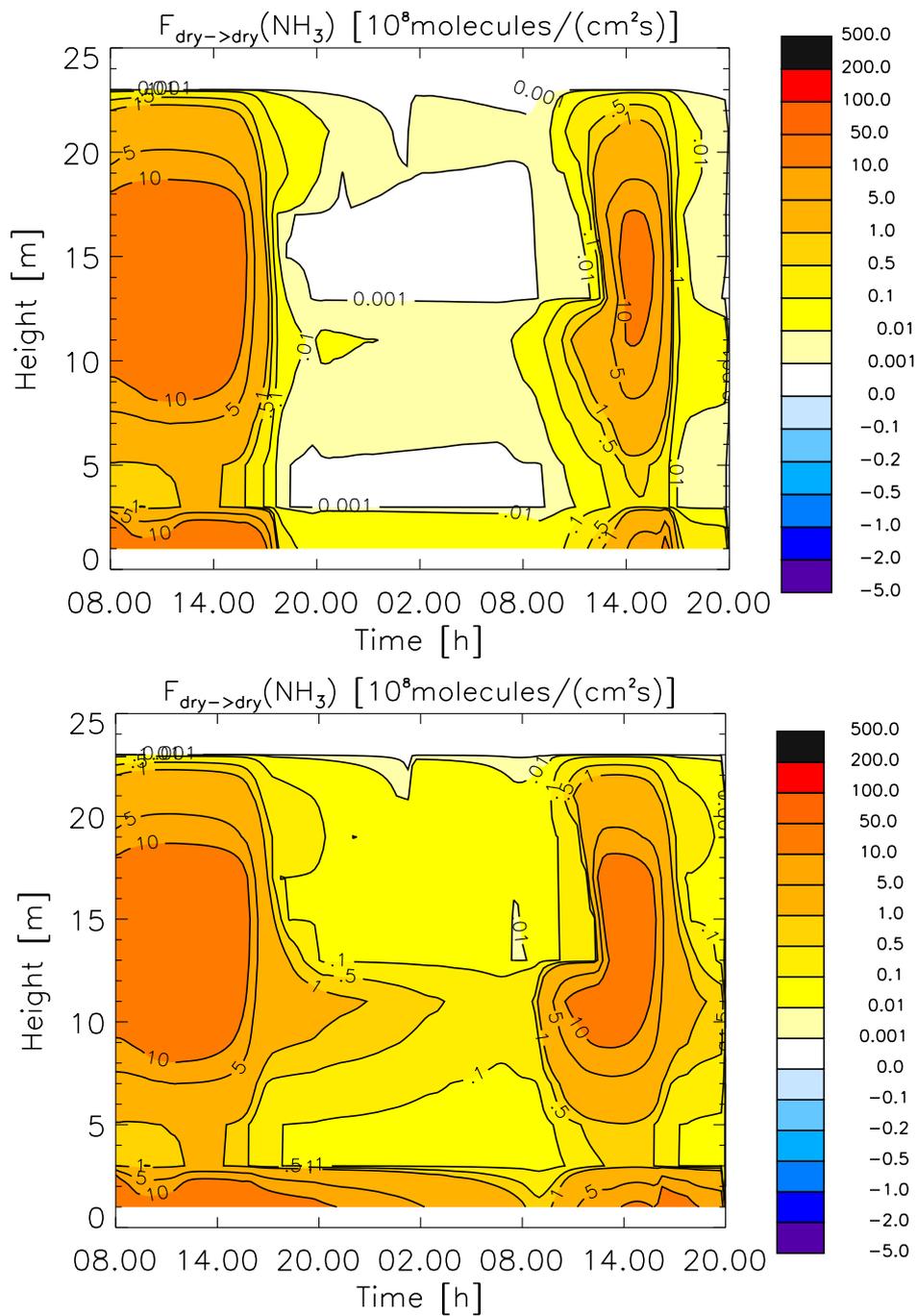


Abbildung 7: Trockendepositionsfluß von NH_3 auf trockene Oberflächen mit (oben) und ohne (unten) Berücksichtigung des Pufferns.

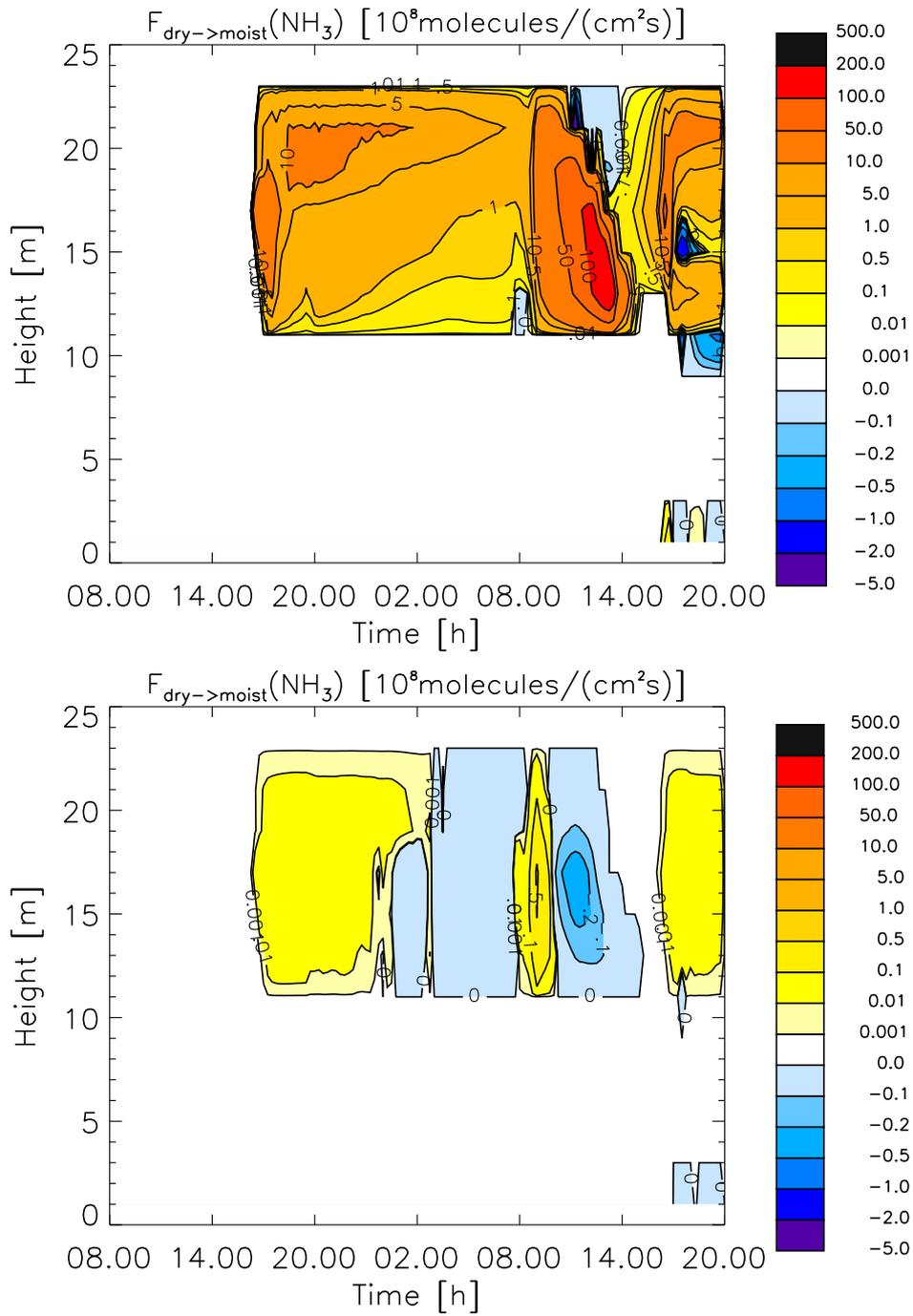


Abbildung 8: Trockendepositionsfluß von NH_3 auf feuchte Oberflächen mit (oben) und ohne (unten) Berücksichtigung des Pufferns.

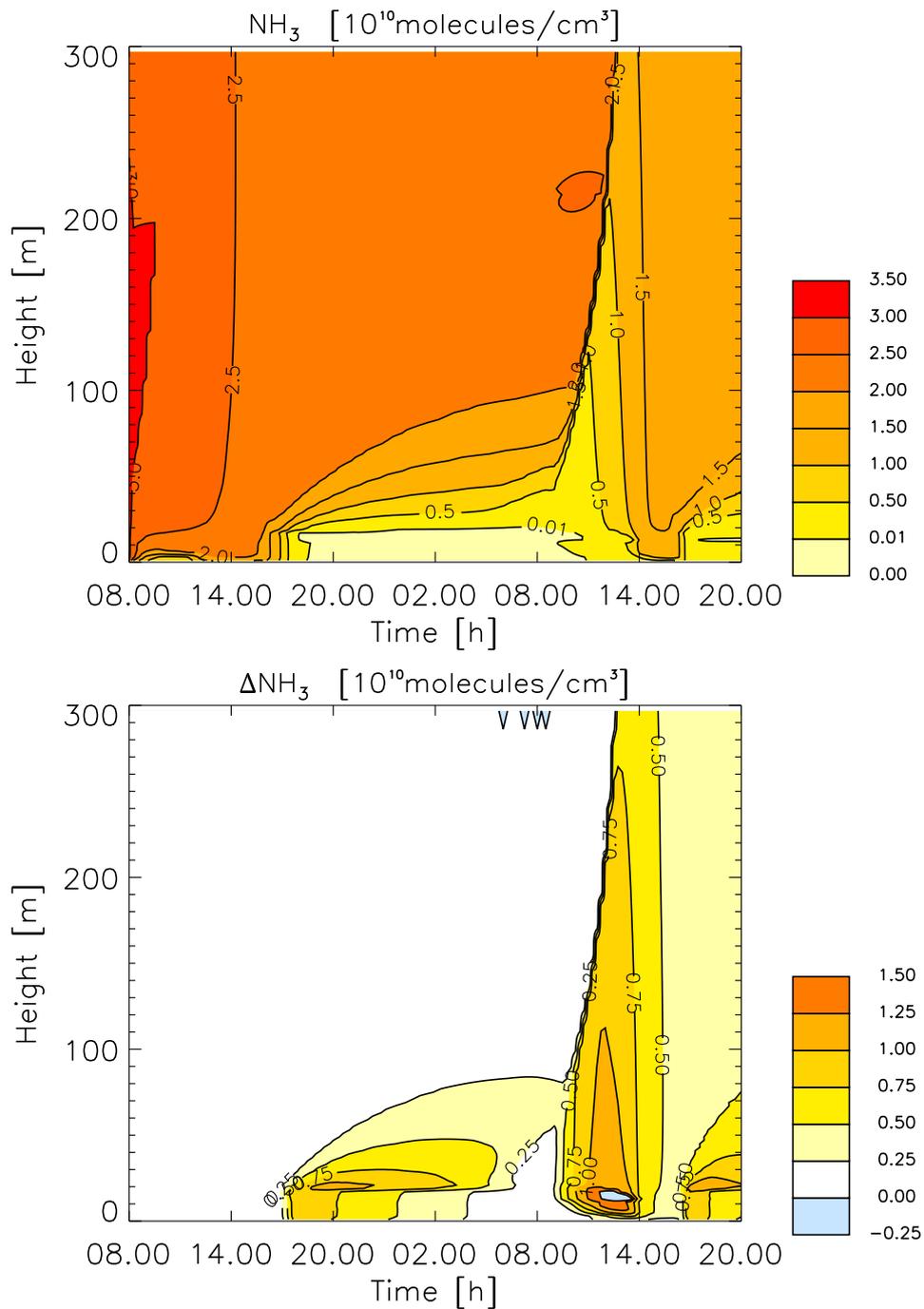


Abbildung 9: NH_3 -Konzentration mit (oben) und Differenz des Modellaufs ohne zum Modellauf mit (unten) Berücksichtigung des Puffers.

Zunahme im Größenbereich $0,5\mu\text{m} - 1,0\mu\text{m}$ (s. strichpunktierte Linie) ist auf die Sedimentation von Tropfen aus höheren Modellschichten zurückzuführen.

CHEMIFOG_V ermöglicht die chemische Charakterisierung des Deponats. Abbildung 3 zeigt die häufigsten Ionen im deponierten Nebelwasser für die drei verschiedenen Umgebungsbedingungen urban, rural und maritim. Außer in den Absolutwerten, die auf die unterschiedlichen Flüssigwassergehalte zurückzuführen sind, unterscheiden sich die Depo-nate in der chemischen Zusammensetzung. Diese zeigt eine Abhängigkeit von der Aerosol-zusammensetzung der jeweiligen Umgebung.

2.11.3 Trockendeposition

Die ungelösten Spurengase deponieren ebenfalls auf den Blattoberflächen. Diese trockene Deposition ist von der Oberflächenbeschaffenheit der Vegetation abhängig. Abbildung 4 zeigt schematisch die Behandlung der Depositionsprozesse in CHEMIFOG_V. Während die Trockendeposition auf trockene Flächen mittels eines Widerstandsansatzes behandelt wird, ist die Trockendeposition auf feuchte Oberflächen über die Diffusion und Aufnahme in die Wasserschicht definiert. Die Aufnahme von Spurengasen in die Flüssigphase ist abhängig von den chemischen Prozessen im Wasserfilm. Im folgenden werden die unterschiedlichen Ergebnisse mit und ohne Berücksichtigung des Puffereffektes am Beispiel von NH_3 dargestellt (s. Abbildung 5). Abbildung 6 zeigt die auf den Blattflächen deponierte Wassermasse und den zugehörigen pH-Wert für einen typischen Modellauf. Abbildungen 7 and 8 zeigen den Tagesgang des Trockendepositionsflusses von NH_3 auf trockene und feuchte Vegetationsoberflächen unter Berücksichtigung des Pufferns, sowie ohne Berechnung von chemischen Prozessen im Wasserfilm. Die Maxima befinden sich im Kronenbereich, der die größte Oberfläche besitzt. Die Maxima werden zum einen durch die Öffnung und damit verbundenene Aufnahmefähigkeit der Stomata während des Tages hervorgerufen, zum anderen liegt eine Ursache in der Verminderung des Widerstands der Blattoberhaut durch die Wasserbedeckung. Zum Vergleich sind die entsprechenden Ergebnisse unter Vernachlässigung der chemischen Reaktionen in der Wasserschicht dargestellt. Wegen des fehlenden Puffereffektes durch negative Ionen wird eine Sättigung erreicht, die zur Reemission von NH_3 aus dem Wasserfilm führt. Abbildung 9 (oben) zeigt die zeitliche Entwicklung der NH_3 -Konzentration in der Grenzschicht. Beim Einsetzen der turbulenten Durchmischung ist der Ausfluß gereinigter Luft und damit der Senkeneffekt der Vegetation deutlich zu erkennen. Abbildung 9 (unten) zeigt die Differenz der NH_3 -Konzentration des Modellaufs ohne zum Modellauf mit Berücksichtigung der chemischen Reaktionen im Blattoberflächenwasser. Die Deposition und damit Reduktion der NH_3 -Konzentration ist unter Vernachlässigung des Pufferns signifikant erhöht.

2.11.4 Größenabhängige Flüssigphasenchemie im Strahlungsnebel

In einer weiteren Studie wurde die Größenabhängigkeit der Konzentrationen chemischer Spezies in der Flüssigphase untersucht. Die Abhängigkeit der Sulfatproduktion in Strah-

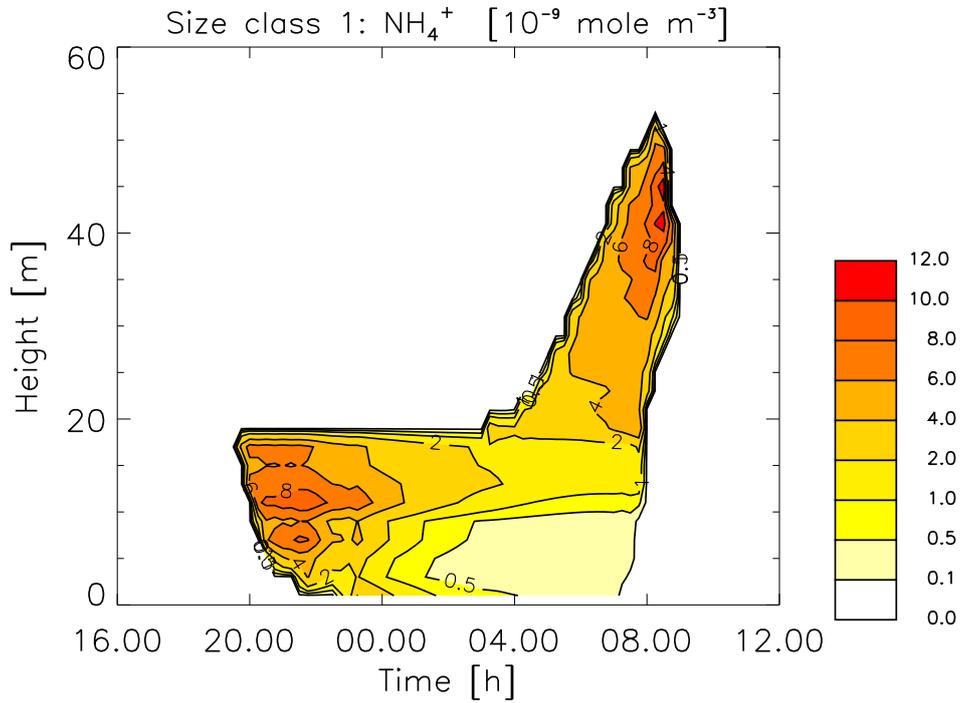


Abbildung 10: Flüssigphasenkonzentration von Ammonium in Größenklasse 1.

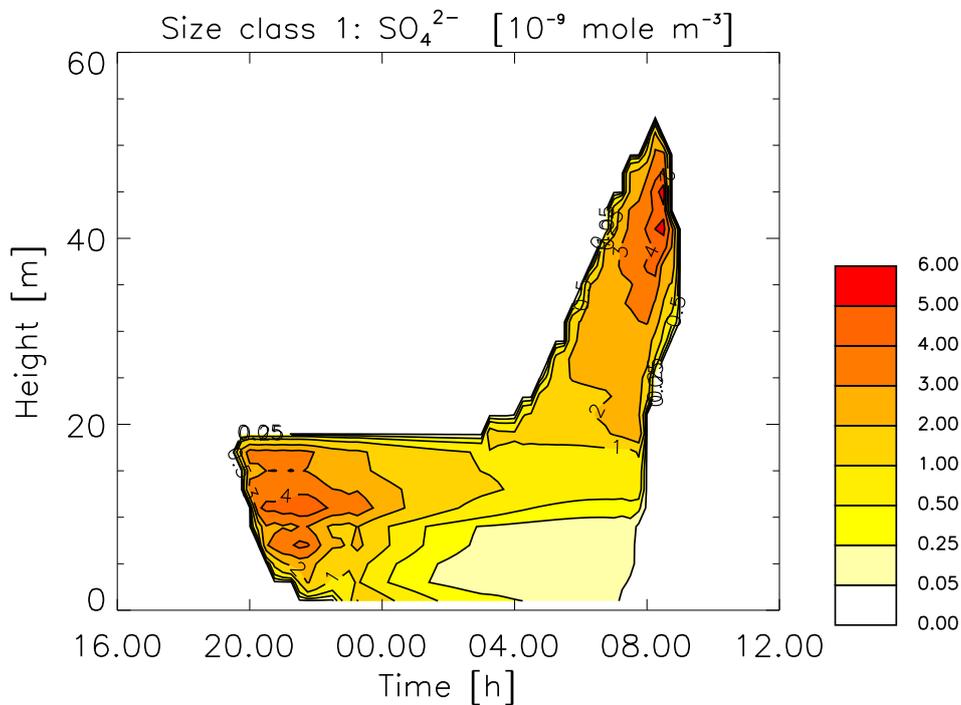


Abbildung 11: Flüssigphasenkonzentration von Sulfat in Größenklasse 1.

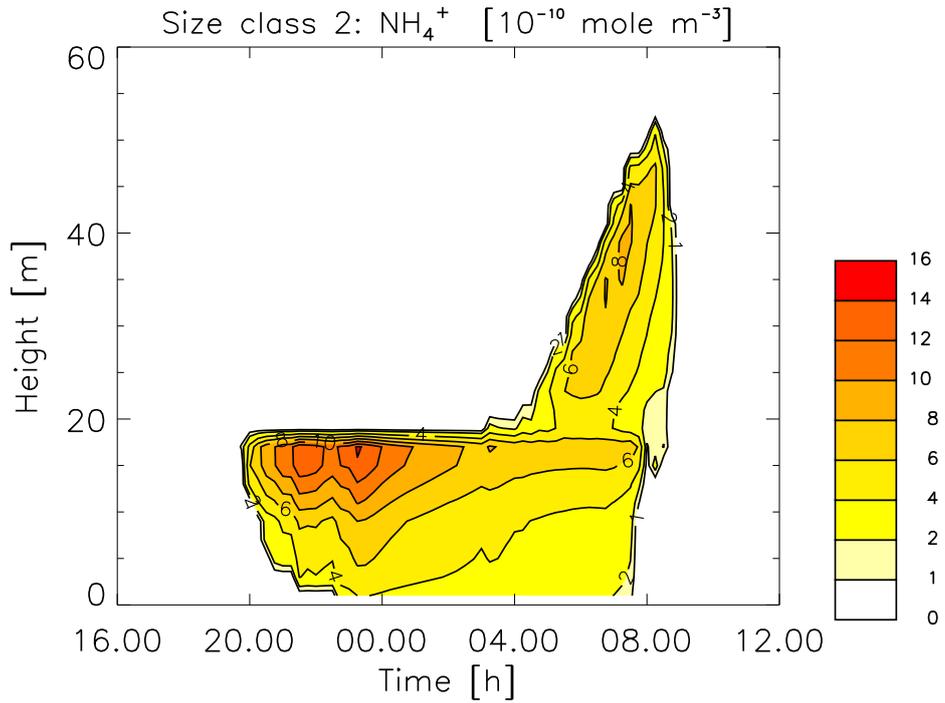


Abbildung 12: Flüssigphasenkonzentration von Ammonium in Größenklasse 2.

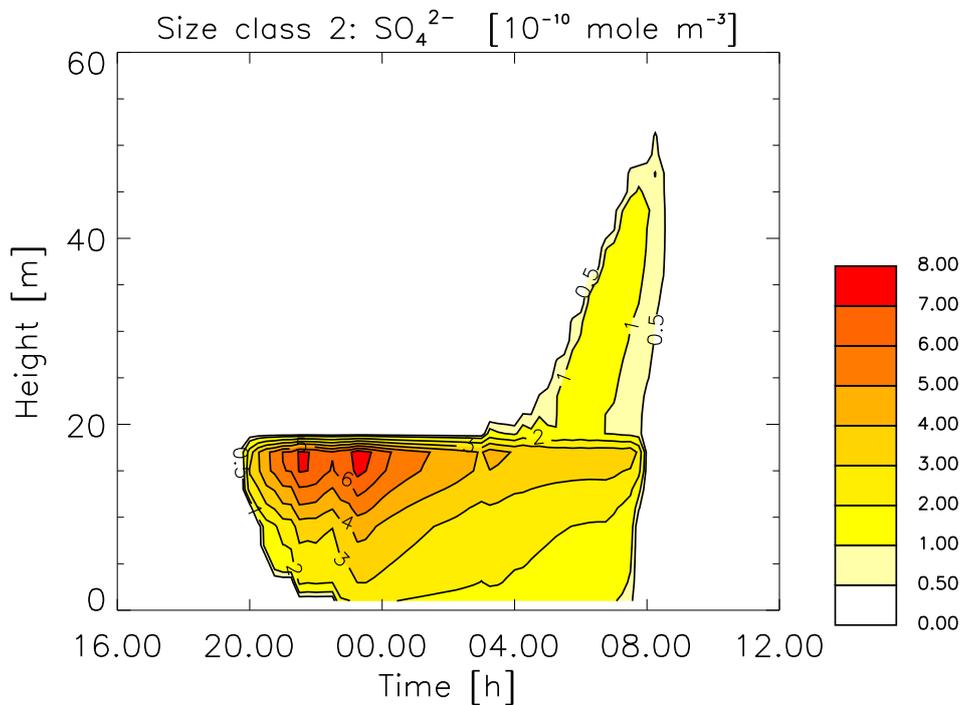


Abbildung 13: Flüssigphasenkonzentration von Sulfat in Größenklasse 2.

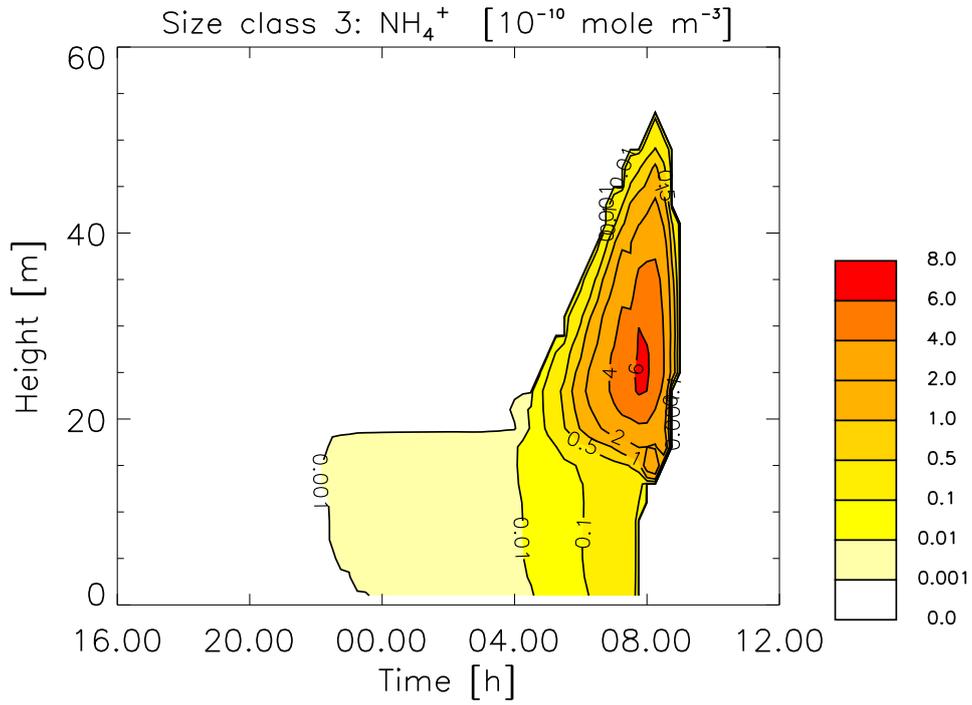


Abbildung 14: Flüssigphasenkonzentration von Ammonium in Größenklasse 3.

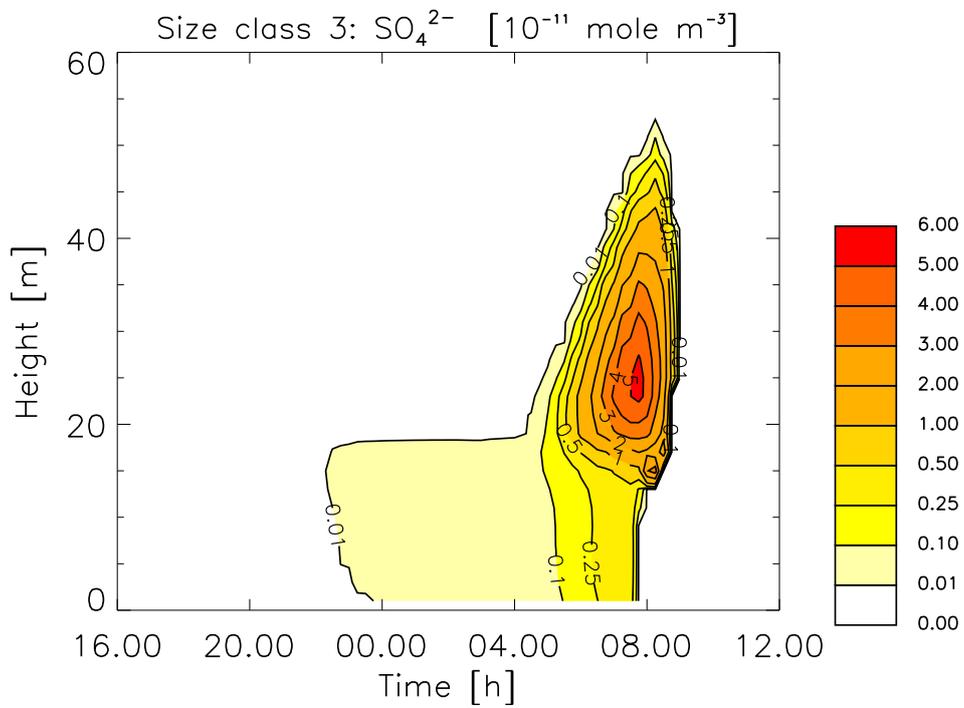
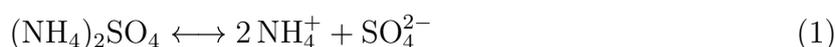


Abbildung 15: Flüssigphasenkonzentration von Sulfat in Größenklasse 3.

lungsnebel von der Tropfengröße wurde in Messungen (e.g., [Rattigan et al., 2001](#)[Rao und Collett, Jr., 1998](#)[Collett, Jr. et al., 1994](#)) und Modellstudien (e.g., [Bott, 1992](#)) untersucht. In dieser Studie wurde zusätzlich der Einfluß von Vegetation, sowie die zeitliche und räumliche Variabilität der Konzentration von Schwefelverbindungen untersucht. Die Quelle der Schwefelverbindungen in den Nebeltropfen sind die Dissoziation von Ammoniumsulfatpartikeln:



und die Aufnahme von SO_2 aus der Gasphase. Ein wichtiger Prozess für die Neubildung von Partikelmasse ist die Oxidation von S(IV) zu S(VI) über die Reaktion mit H_2O_2 , Ozon oder Fe(III).

Abbildungen 10 bis 15 zeigen die Konzentrationen von NH_4^+ und SO_4^{2-} in den drei Größenklassen 1 ($0.5 \mu\text{m} < r < 2 \mu\text{m}$), 2 ($2 \mu\text{m} < r < 11.5 \mu\text{m}$) und 3 ($r > 11.5 \mu\text{m}$). In Größenklasse 1 ist die Konzentration von NH_4^+ in etwa doppelt so groß wie die Konzentration von SO_4^{2-} . Die Konzentration ist folglich fast ausschließlich durch die Dissoziation der Aerosolpartikel bestimmt. Dieses gilt ebenso für die zweite Größenklasse innerhalb der Vegetation. Oberhalb der Vegetation führt die Aufnahme von NH_3 aus der Gasphase zu einer stark erhöhten NH_4^+ -Konzentration. In Größenklasse 3 sind die Konzentrationen im wesentlichen durch die Aufnahme aus der Gasphase bestimmt. Innerhalb der Vegetation führt das Blattoberflächenwasser zu einer Reduzierung der Gasphasenkonzentration und somit zu einer deutlichen Diskrepanz zwischen den Höhenbereichen innerhalb und oberhalb des Waldes.

Desweiteren führen mikrophysikalisches Partikelwachstum und Sedimentationsprozesse zu zeitlichen und räumlichen Variationen in der Größenabhängigkeit der Konzentrationen.

2.11.5 Der Einfluß des Waldes auf primäre Spurengasemissionen

Mit CHEMIFOG_V wurden die physikalischen und chemischen Wechselwirkungen innerhalb eines Waldes untersucht, die zu einer Modifizierung der Spurengasemissionen aus dem Waldbestand im Vergleich zu den primären Emissionen von NO aus dem Boden und Isopren aus den Pflanzen führen. Zu diesem Zweck wurden verschiedene Modellstudien durchgeführt.

Abbildung 16 zeigt die Differenz der NO-Konzentration innerhalb des Waldbestandes im Referenzlauf zum Modellauf unter Vernachlässigung der NO-Emissionen. Die Emissionen sind in den bodennahen Schichten konzentriert. Nur ein geringer Anteil wird aus dem Wald heraustransportiert. Ursache sind der eingeschränkte Austausch zwischen den bodennahen Schichten und der Atmosphäre oberhalb des Waldes, sowie chemische Abbaureaktionen. Unter Vernachlässigung der Reaktionen mit Isopren ergibt sich eine deutliche höhere NO-Konzentration wie Abbildung 17 zeigt. Der Einfluß der Aufnahme von Spurengasen in die Flüssigphase ist in Abbildung 18 dargestellt. Die Aufnahme von NO_y in die Nebeltropfen führt lediglich gegen 8.00 Uhr am zweiten Modelltag oberhalb des Waldes zu einer Reduktion der Gasphasenkonzentration. Die Nebeltropfen sedimentieren aus dieser Schicht. Im Waldbestand ist die Gasphasenkonzentration von NO_y erhöht, da die Trockendeposition verringert wird.

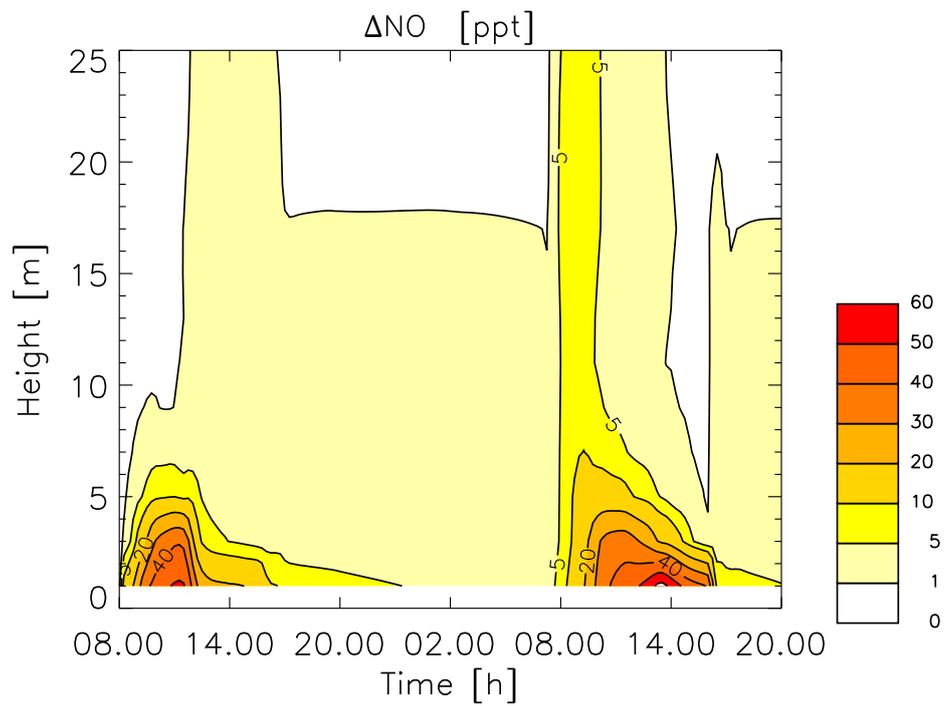


Abbildung 16: Differenz zwischen den VMR von NO innerhalb des Waldbestandes in Studien mit zu ohne NO-Emissionen.

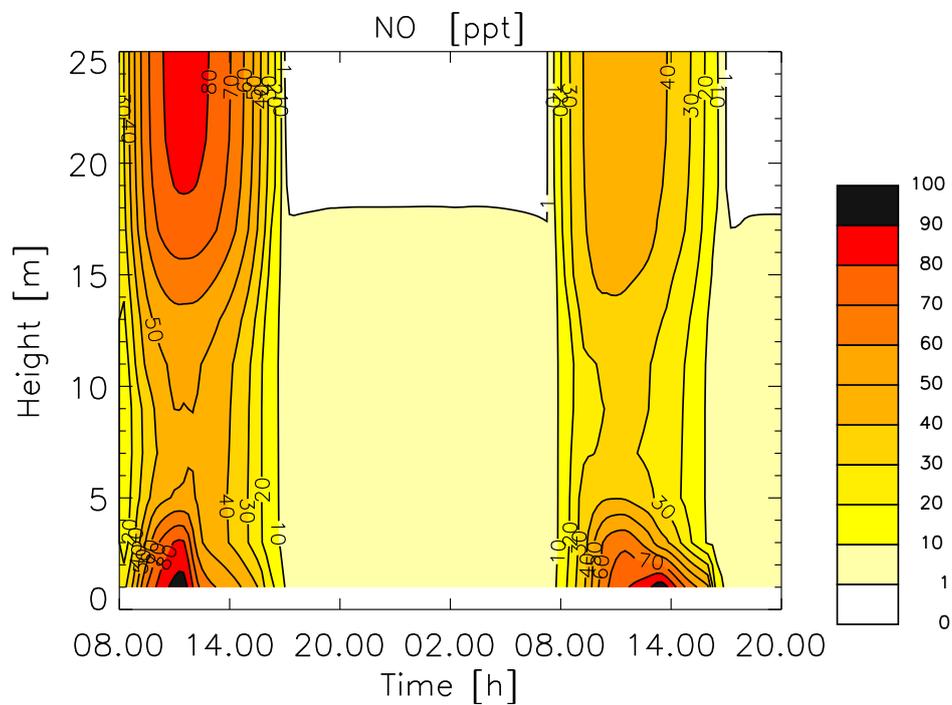


Abbildung 17: VMR von NO innerhalb des Waldbestandes unter Vernachlässigung der Isoprenchemie.

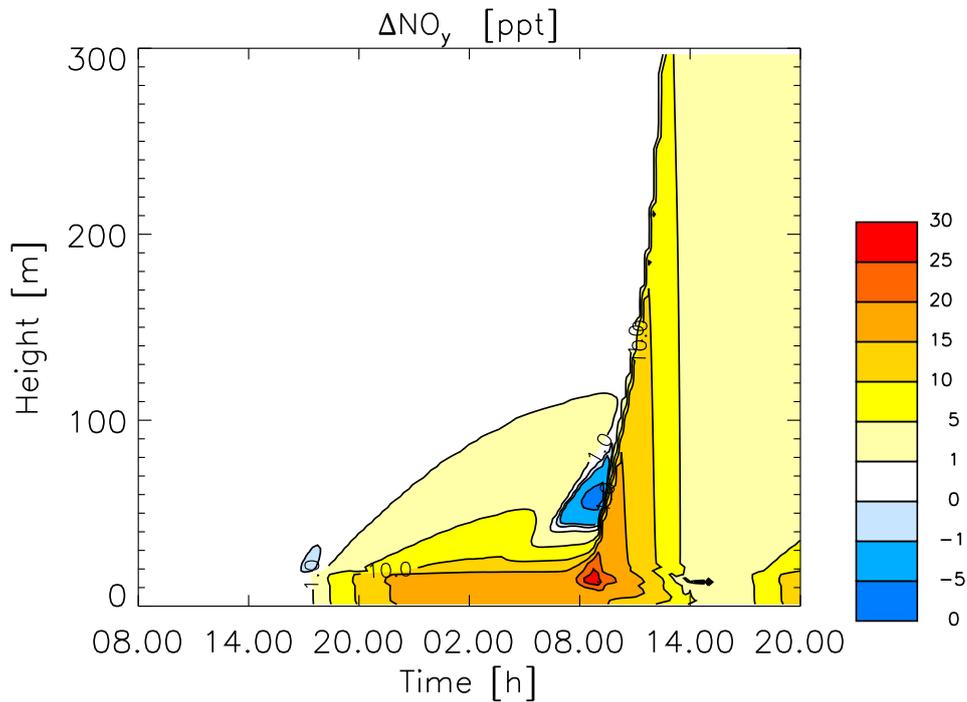


Abbildung 18: Differenz zwischen den VMR von NO_y in den unteren 300 m in Studien mit zu ohne Aufnahme von Spurengasen in die Flüssigphase.

Zusammenfassend wurden folgende Ergebnisse wurden für das gewählte Szenario erzielt:

- Turbulenter Austausch zwischen der Luft innerhalb und oberhalb der Vegetation ist entscheidend für die Emissionen aus dem Waldbestand. In diesem Zusammenhang ist zudem die Höhe von Bedeutung, in der die Emissionen auftreten
- NO wird nachts effektiv durch Ozon oxidiert und nicht akkumuliert.
- Die Senkenwirkung durch Trockendeposition überwiegt der Emission von NO_y .
- Blattoberflächenwasser führt zu einer Verminderung der NO_y -Deposition und damit zu einer Erhöhung der Emission aus dem Wald.
- Chemische Reaktionen mit Isopren führen zu einer Erniedrigung der NO -Konzentrationen, jedoch zu einer Erhöhung der NO_y -Konzentrationen aufgrund der Verschiebung der NO_y -Partitionierung zu organischen Nitraten mit höheren Lebensdauern.
- Isopren wird durch chemische Reaktionen (insbesondere tagsüber durch OH) und durch trockene Deposition am Boden im Waldbestand effektiv abgebaut.

3 Zusammenfassung

Im Rahmen des Projektes wurde zum ersten Mal ein detailliertes Strahlungsnebelmodell entwickelt, welches die Wechselwirkungen zwischen Mikrophysik, Chemie und Vegetation beschreibt.

Die Ergebnisse zeigen einen signifikanten Einfluß der Vegetation auf die Nebelentwicklung. Dieses Ergebnis ist als Grundlage für regionale Vorhersagemodelle interessant, insbesondere für die Erweiterung des auf MIFOG basierenden Vorhersagemodells PAFOG (Bott und Trautmann, 2002).

CHEMIFOG_V ermöglicht quantitative und qualitative Studien zur Deposition, hier insbesondere zu den chemischen Eigenschaften des Deponats, und stellt somit ein wertvolles Werkzeug für Bereiche der regionalen Atmosphärenforschung, aber auch der Forstwissenschaften dar.

Ein Strahlungsnebelereignis führt in Wechselwirkung mit Vegetation zu einer signifikanten Modifikation der Aerosolpartikel- und Spurengasgehalte der atmosphärischen Grenzschicht.

Wasserfilme auf Vegetationsoberflächen führen zu einer signifikanten Änderung der Trockendepositionsraten von löslichen Spurengasen. Insbesondere chemische Reaktionen innerhalb der Wasserfilme haben großen Einfluß auf die Größe und Richtung der Depositionsflüsse.

Die Sulfatproduktion in Nebeltropfen zeigt eine deutliche Größenabhängigkeit. Darüber hinaus zeigen sich signifikante Unterschiede innerhalb und oberhalb der Vegetation. Ebenso zeigte sich eine starke zeitliche Variabilität der Größenabhängigkeit der Spurenstoffkonzentrationen in der Flüssigphase.

Primäre Emissionen von NO und Isopren werden durch physikalische und chemische Prozessen in der Vegetation stark beeinflusst und führen zu einer signifikanten Modifizierung der Emissionen aus dem Waldbestand.

Weiterhin bildet das komplexe Modell die Grundlage zum Test sowie zur Entwicklung von Parametrisierungen der Senken- und Quellenwirkung von Vegetation zum Einsatz in großräumigeren Modellen.

Die Resultate zeigen

- eine signifikante Senkenwirkung der Vegetation für Spurengase
- eine signifikante Senkenwirkung der Vegetation für Aerosolpartikel
- eine starke Abhängigkeit der Trockendeposition von den Oberflächenbeschaffenheiten, sowie die Kopplung zur Chemie auf benetzten Blattflächen
- eine signifikante Modifikation der Grenzschichtzusammensetzung aufgrund eines Nebelereignisses
- eine Abhängigkeit der Zusammensetzung des Deponats vom initialisierten Aerosol.

- eine komplexe Wechselwirkung von primären NO- und Isopren-Emissionen mit physikalischen und chemischen Prozessen innerhalb des Waldbestandes:
 - Trockendeposition
 - Aufnahme in die Flüssigphase
 - Turbulenter Transport
 - Chemische Reaktionen

Literaturverzeichnis

- Bott, A.: 1992, *Theoretical and numerical investigations on the physico-chemical microstructure of radiation fogs*. Institute of Atmospheric Physics. Habilitation thesis.
- Bott, A. und G. R. Carmichael: 1993, ‘Multiphase chemistry in a microphysical radiation fog model — a numerical study’. *Atmos. Environ.* **27A**, 503–522.
- Bott, A., U. Sievers, und W. Zdunkowski: 1990, ‘A radiation fog model with a detailed treatment of the interaction between radiative transfer and fog microphysics’. *J. Atmos. Sci.* **90**, 2153–2166.
- Bott, A. und T. Trautmann: 2002, ‘PAFOG – A new efficient forecast model of radiation fog and low level stratiform clouds’. *Atmos. Res.* in press.
- Collett, Jr., J. L., A. Bator, X. Rao, und B. B. Demoz: 1994, ‘Acidity variations across the cloud drop size spectrum and their influence on rates of atmospheric sulfate production’. *J. Geophys. Res. Lett.* **21**(22), 2393–2396.
- Damian-Iordache, V.: 1996, ‘KPP — Chemistry simulation development environment’. Master’s thesis, University of Iowa.
- Ganzeveld, L. N. und J. Lelieveld: 1995, ‘Dry deposition parameterization in a chemistry general circulation model and its influence on the distribution of reactive trace gases’. *J. Geophys. Res.* **100**(D10), 20,999–21,012.
- Geron, C. D., A. Günther, und T. Pierce: 1994, ‘An improved model for estimating emissions of volatile organic compounds from forests in the eastern United States’. *J. Geophys. Res.* **99**(D6), 12,773–12,791.
- Günther, A. et al.: 1995, ‘A global model of natural volatile organic compound emissions’. *J. Geophys. Res.* **100**(D5), 8873–8892.
- Herrmann, H., B. Ervens, H.-W. Jacobi, R. Wolke, P. Nowacki, und R. Zellner: 2000, ‘CAPRAM2.3: A chemical aqueous phase radical mechanism for tropospheric chemistry’. *J. Atmos. Chem.* **36**, 231–284.

- Landgraf, J. und P. Crutzen: 1998, ‘An efficient method for online calculations of photolysis and heating rates’. *J. Atmos. Sci.* **55**(5), 863–878.
- Luo, B., K. S. Carslaw, T. Peter, und S. L. Clegg: 1995, ‘Vapour pressures of H₂SO₄/HNO₃/HCl/HBr/H₂O solutions to low stratospheric temperatures’. *Geophys. Res. Lett.* **22**, 247–250.
- Pitzer, K. S.: 1991, *Activity coefficients in electrolyte solutions, 2nd edition*. CRC Press, Inc., Boca Raton, FL.
- Pöschl, U., R. von Kuhlmann, N. Poisson, und P. J. Crutzen: 2000, ‘Development and intercomparison of condensed isoprene oxidation mechanisms for global atmospheric modeling’. *J. Atmos. Chem.* **37**(1), 29–52.
- Rao, X. und J. L. Collett, Jr.: 1998, ‘The drop size-dependence of iron and manganese concentrations in clouds and fogs: Implications for sulfate production’. *J. Atmos. Chem.* **30**, 273–289.
- Rattigan, O. V., J. Reilly, C. Judd, K. F. Moore, M. Das, D. E. Sherman, V. A. Dutkiewicz, J. L. Collett, Jr., und L. Husain: 2001, ‘Sulfur dioxide oxidation in clouds at Whiteface Mountain as a function of drop size’. *J. Geophys. Res.* **106**, 17,347–17,358.
- von Glasow, R. und A. Bott: 1999, ‘Interaction of radiation fog with tall vegetation’. *Atmos. Environ.* **33**, 1333–1346.
- Yienger, J. J. und H. Levy II: 1995, ‘Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions’. *J. Geophys. Res.* **100**(D6), 11,447–11,464.

Konferenzbeiträge und Publikationen

- Winterrath, T., und A. Bott, Wet deposition of aerosols and atmospheric trace gases in vegetation by fog — numerical case studies using detailed microphysics, *J. Aer. Sc.*, **30**, *Suppl. 1*, 459–460, 1999.
- Winterrath, T., und A. Bott, Wet deposition of aerosols and atmospheric trace gases in vegetation by fog — numerical case studies using detailed microphysics, Poster auf der Sixth Scientific Conference of the International Global Atmospheric Chemistry Project (IGAC), Bologna, Italien, 1999.
- Winterrath, T., und A. Bott, Ein chemisch-mikrophysikalisches Nebelmodell zur Beschreibung der Feuchtdeposition von Aerosolpartikeln und atmosphärischen Spurenstoffen im Pflanzenbestand, Vortrag bei der DPG-Tagung, Bremen, 2000.
- Winterrath, T., und A. Bott, Moist deposition of aerosols and atmospheric trace gases on vegetation by radiation fog — numerical case studies using detailed microphysics, Vortrag bei der Sixth International Conference on Air-Surface Exchange of Gases and Particles, Edinburgh, Schottland, 2000.

- Winterrath, T., und A. Bott, Moist and dry deposition of aerosols and atmospheric trace gases to vegetation during a radiation fog event, Vortrag bei der Second International Conference on Fog and Fog Collection, St. John's, Neufundland, 2001.
- Winterrath, T., und A. Bott, Interaction between radiation fog and vegetation: Multi-phase chemical processes, Poster bei der EAC, Leipzig, 2001.
- Winterrath, T., und A. Bott, CHEMIFOG_V — A model to simulate radiation fogs and their interaction with vegetation and chemistry, *Water, Air, and Soil Pollut.: Focus*, 1, 373–380, 2001.
- Winterrath, T., *Numerical investigations on atmosphere-biosphere interactions — Impact of radiation fog and leaf surface water*, Institute for Physics of the Atmosphere, University of Mainz, PhD thesis, 2002.