

Relative Bedeutung chemischer und
physikalischer Rückkopplungen in
Klimasensitivitätsstudien mit dem
Klima-Chemie-Modellsystem EMAC/MLO

Dissertation
der Fakultät für Physik der
Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von Simone Dietmüller
aus München

München, den 12. September 2011

1. Gutachter: Prof. Dr. Robert Sausen
2. Gutachter: Prof. Dr. Bernhard Mayer

Tag der mündlichen Prüfung: 8.11.2011

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theorie	7
2.1	Strahlungsantrieb, Rückkopplungen und Klimasensitivität	7
2.1.1	Strahlungsantrieb und Klimaresponse	7
2.1.2	Klimasensitivität und Klimarückkopplungen	11
2.2	Methoden der Rückkopplungsanalyse	15
2.2.1	Traditionelle CRF-Methode	15
2.2.2	Stuber-Methode	16
2.2.3	'Partial Radiative Perturbation'-Methode	16
2.3	Chemische Grundlagen	17
2.3.1	Ozonchemie der Stratosphäre	17
2.3.2	Chemische Wasserdampfproduktion in der Stratosphäre	18
2.3.3	Ozonchemie der Troposphäre	19
2.4	Klima-Chemie-Wechselwirkungen	20

3	Modellbeschreibung	23
3.1	Globales Zirkulationsmodell ECHAM5	23
3.2	Klima-Chemie-Modellsystem EMAC	24
3.3	Chemiemodul MECCA	28
3.4	Beschreibung der Emissionsdaten	29
3.5	Modellkonfiguration EMAC/MLO	30
3.6	Zusätzliche Diagnosetools	30
4	Durchgeführte Klimagleichgewichtssimulationen	33
4.1	Referenzexperimente	33
4.2	Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten CO ₂ -Konzentrationen	35
4.3	Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten NO _x - und CO-Emissionen	36
5	Alternative Trennung von Strahlungsantrieb und -rückkopplung	39
5.1	Gregory-Approximation	39
5.2	Gregory-Approximation in Klimagleichgewichtssimulationen mit EMAC/MLO	42
5.3	Kritische Betrachtung der Gregory-Approximation	46
6	Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten CO₂-Konzentrationen	49
6.1	Response strahlungsaktiver Gase im CO ₂ -Verdoppelungsexperiment	49
6.1.1	Ozon	49
6.1.2	Methan und Lachgas	54
6.2	Response und Responseänderung ausgewählter physikalischer Parameter	55
6.2.1	Temperatur	55
6.2.2	Wasserdampf	57

6.3	Chemisch bedingte Strahlungsrückkopplungen	59
6.3.1	Strahlungsrückkopplung von Ozon	59
6.3.2	Strahlungsrückkopplung von Methan und Lachgas	64
6.3.3	Strahlungsrückkopplungsänderung von Wasserdampf	65
6.4	Linearität chemischer Rückkopplungen in weiteren CO ₂ -Erhöhungssimulationen	67
6.5	Einordnung chemischer Rückkopplungen	68
7	Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten NO_x- und CO-Emissionen	71
7.1	Response und Responseänderung strahlungsaktiver Gase	71
7.1.1	Ozon	71
7.1.2	Methan und Lachgas	79
7.2	Response und Responseänderung ausgewählter physikalischer Parameter . .	82
7.2.1	Temperatur	82
7.2.2	Wasserdampf	84
7.3	Chemische bedingte Strahlungsrückkopplungen	87
7.3.1	Strahlungsrückkopplung von strahlungsaktiven Gasen	87
7.3.2	Strahlungsrückkopplungsänderung von Wasserdampf	88
7.4	Zusammenfassung der Strahlungsrückkopplung in allen Erhöhungsexperimenten	89
8	Klimasensitivität im Klima-Chemie-Modellsystem	91
8.1	Klimasensitivität in CO ₂ -Erhöhungsexperimenten	91
8.2	Runaway-Greenhouse-Effekt	94
8.3	Klimasensitivität in NO _x - und CO-Erhörungsexperimenten	95
8.4	Diskussion der Ergebnisse	96
9	Zusammenfassung und Ausblick	99
	Anhang	105
	Literaturverzeichnis	113

Kurzfassung

Die Größe einer Klimaänderung hängt vom Strahlungsantrieb und von im System wirkenden Rückkopplungsmechanismen ab. Klimamodelle ohne Atmosphärenchemie berücksichtigen nur physikalische Rückkopplungsmechanismen. Diese können die Klimawirkung einer Störung verstärken oder dämpfen. Gekoppelte Klima-Chemie-Modelle erweitern die in einem System wirkenden Rückkopplungen, indem Rückkopplungen über strahlungsaktive Gase erfasst werden. In solchen Modellen bewirkt die durch einen Strahlungsantrieb verursachte Änderung in den physikalischen Klimavariablen eine veränderte Verteilung der strahlungsaktiven rückkoppelnden Gase. Diese Arbeit quantifiziert erstmals chemische Rückkopplungen und bestimmt deren Einfluss auf die Klimasensitivität.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Klimagleichgewichtssimulationen mit dem Klima-Chemie-Modell EMAC durchgeführt, welches zu diesem Zweck an einen Deckschichtozeanmodell gekoppelt wurde. Um lange, rechenzeitintensive Simulationen bewerkstelligen zu können, wurde eine vereinfachte Konfiguration der Atmosphärenchemie gewählt. Die durchgeführten Gleichgewichtssimulationen wurden einerseits durch eine Erhöhung der CO₂-Konzentrationen, andererseits durch eine Erhöhung anthropogener NO_x- und CO-Emissionen angetrieben.

Die CO₂-Erhöhungssimulationen zeigen signifikante Konzentrationsänderungsmuster in den strahlungsaktiven Gasen. Infolge von verstärktem Tropical-upwelling nimmt in der unteren tropischen Stratosphäre die Ozonkonzentration ab. In den stratosphärischen Extratropen wird Ozon aufgrund von kälteren Stratosphärentemperaturen langsamer abgebaut, was zu einer Ozonzunahme führt. Troposphärische Ozonänderungen sind hauptsächlich auf geänderte NO_y-Konzentrationen (geänderte Auswaschprozesse und Blitz-NO_x-Emissionen) zurückzuführen. Stratosphärische Methan- und Lachgaszunahme sind weitgehend durch geänderte chemische Reaktionen in einer kälteren Stratosphäre bedingt. Ihre troposphärischen Konzentrationen ändern sich in dieser Modellkonfiguration infolge von fest vorgeschriebenen Bodenkonzentrationen kaum. Änderungen in strahlungsaktiven Gasen modifizieren die Verteilung von Temperatur und Wasserdampf. Charakteristisch ist eine strahlungsbedingte Temperaturabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre sowie eine Temperaturzunahme in den stratosphärischen Extratropen. Auch der stratosphärische Wasserdampfresponse zeigt eine starke Abnahme gegenüber dem nicht rückkoppelnden Fall. Troposphärische Responseänderungsmuster von Temperatur und Wasserdampf sind nicht signifikant.

Die für Ozon, Methan, Lachgas und Wasserdampf durchgeführte Rückkopplungsanalyse zeigt, dass die negative Rückkopplung über stratosphärisches Ozon der wichtigste chemische Rückkopplungsparameter in CO₂-angetriebenen Erhöhungsexperimenten ist. Die damit verbundene Abnahme in der stratosphärischen Wasserdampfrückkopplung ist quantitativ von

gleicher Bedeutung. Konsistent damit ist die signifikante Dämpfung der Klimasensitivität in der Simulation mit interaktiver Chemie. Im CO₂-Verdoppelungsexperiment ist die Klimasensitivität durch das Wirken von chemischen Rückkopplungen um 4% und im CO₂-Vervierfachungsexperiment um 8% gegenüber dem Experiment ohne Chemie gedämpft. Die unterschiedlich starke Dämpfung mit zunehmender Antriebsstärke deutet auf Nichtlinearitäten in den Rückkopplungsmechanismen hin.

Verglichen mit der Rückkopplungsstärke von physikalischen Komponenten erweisen sich Rückkopplungen über strahlungsaktive Gase als klein. Es zeigt sich allerdings, dass der in IPCC angegebene gegenwärtige Strahlungsantrieb durch anthropogene Emissionen und die Rückkopplungsstärke von stratosphärischem Ozon sowie von der stratosphärischen Wasserdampfänderung von gleicher Größenordnung sind. Wenn die Strahlungswirkung von Ozonänderungen richtig beschrieben werden soll, ist es wichtig die Rückkopplungen zu berücksichtigen.

Im Falle der emissionsangetriebenen Erhöhungssimulation (9-fach erhöhte anthropogene NO_x- und CO-Emissionen) mit interaktiver Chemie ist die Klimasensitivität nicht signifikant erhöht. Der Vergleich mit dem CO₂-angetriebenen Experiment zeigt, dass die Variation der Antriebsart unterschiedliche dominierende Rückkopplungsprozesse auslöst. Das Ergebnis der Rückkopplungsanalyse zeigt, dass die negative Rückkopplung über troposphärisches Ozon sowie die negative Rückkopplungsänderung des stratosphärischen Wasserdampfs signifikant sind. Es müssen demnach in anderen Rückkopplungsmechanismen Änderungen auftreten, die den dämpfenden Effekt der oben genannten Rückkopplungen kompensieren. Eine vollständige Rückkopplungsanalyse war mit der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Methode nicht möglich. Für ein umfassendes Verständnis der Änderung in der Klimasensitivität ist solche aber, wie sich gezeigt hat, nötig.

Kapitel 1

Einleitung

Seit Beginn der Industrialisierung verändern anthropogene Aktivitäten die Zusammensetzung der Atmosphäre. Daraus resultierende Klimaänderungen sind nach gegenwärtigem wissenschaftlichen Verständnis sehr wahrscheinlich (Hansen et al., 2005; Solomon et al., 2007). Der regierungsübergreifende Ausschuss für Klimaänderungen, IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change), hat die Aufgabe, Ursachen und Bedeutung des Klimawandels einzuschätzen. IPCC verfasst Sachbestandsberichte (Assessment Reports), die im Wesentlichen auf bereits publizierten Forschungsergebnissen basieren und die Grundlage für politische Entscheidungen zum Erreichen von Klimaschutzziele bilden sollen. So dienen die Berichte des IPCC auch als Basis für die Klimarahmenkonvention UNFCCC (United Nations Framework Convention on Climate Change), deren Ziel es ist, die Treibhausgase der Atmosphäre auf ein Niveau zu stabilisieren, das schädliche anthropogene Eingriffe in das Klimasystem vermeidet (UNFCCC, Art. 2). Der aktuellste Bericht des IPCC ist der 2007 erschienene vierte Assessment Report (Solomon et al., 2007), im Folgenden AR4 genannt. Seit dem letzten IPCC-Sachbestandsbericht von 2001 (Houghton et al., 2001) hat sich das Verständnis des Klimasystems weiter verbessert und das Vertrauen in die Existenz einer anthropogen bedingten Klimaänderung hat signifikant zugenommen. Die beobachtete globale Temperaturzunahme seit 1950 ist mit einer Wahrscheinlichkeit von über 90% der beobachteten Zunahme in den anthropogenen Treibhausgasen zuzuschreiben (Solomon et al., 2007).

Änderungen in Treibhausgas- und Aerosolkonzentrationen, solarer Einstrahlung und Oberflächeneigenschaften können die Strahlungsbilanz des Systems Erdboden-Troposphäre verändern. Um die unterschiedlichen Konzentrationsänderungen untereinander hinsichtlich ihrer Klimawirkung quantitativ zu vergleichen, werden geeignete Maßzahlen benötigt. Seit dem ersten IPCC-Sachbestandsbericht von 1990 (Houghton et al., 1990) ist der Strahlungsantrieb, der die Änderung der Strahlungsbilanz des Systems Erdboden-Troposphäre angibt, die am häufigsten verwendete Maßzahl und somit die Grundlage für die vergleichende Bewertung verschiedener Beiträge zur erwartenden Klimaänderung.

Der AR4 liefert eine verbesserte Datengrundlage für Veränderungen von Treibhausgasen, Aerosolen, solarer Aktivität und Oberflächeneigenschaften. Eine genauere Abschätzung des Strahlungsantriebs ist die Folge (Solomon et al., 2007). Die in AR4 zusammengestellten einzelnen Beiträge der klimarelevanten Spurengase zum gesamten Strahlungsantrieb sind

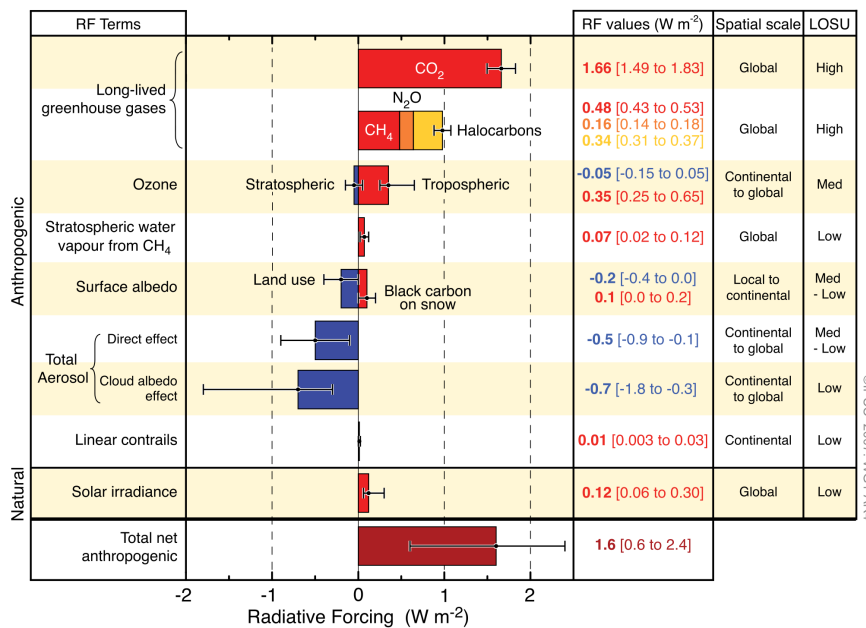


Abbildung 1.1: Beiträge der einzelnen Antriebskomponenten zum gesamten global gemittelten Strahlungsantrieb. Strahlungsantriebe sind auf die Änderung der Emissionen von natürlichen und anthropogenen Quellen zurückzuführen. Die Werte repräsentieren den Strahlungsantrieb von 2005 relativ zu 1750. Darstellung nach Forster et al. (2007).

zusammen mit ihren statistischen Unsicherheiten in Abbildung 1.1 dargestellt. Die in dieser Arbeit angegebenen Unsicherheiten sind jeweils als eine Standardabweichung zu verstehen. Der Strahlungsantrieb bezieht sich auf das Jahr 2005 relativ zur vorindustriellen Periode (1750). Aus dieser Abbildung geht hervor, dass die Summe der anthropogenen Einflüsse den Strahlungshaushalt der Atmosphäre signifikant ändern. Positive Beiträge zum Strahlungsantrieb kommen vor allem durch die Zunahme von Treibhausgasen zustande. Hier spielt Kohlendioxid (CO_2), gefolgt von Methan (CH_4) und Ozon (O_3), die wichtigste Rolle. Einen negativen Beitrag zum Strahlungsantrieb liefern die Aerosole. Der einzige natürliche Strahlungsantrieb mit Langzeitwirkung wird durch die Änderung der solaren Einstrahlung hervorgerufen und ist sehr viel kleiner als der gesamte positive anthropogene Strahlungsantrieb.

Für die Antwort des Klimasystems (Response) auf einen Strahlungsantrieb ist die globale bodennahe Temperatur ein wichtiger und in vieler Hinsicht repräsentativer Parameter. Ihre Änderung im neuen Klimagleichgewicht verhält sich annähernd proportional zur Änderung der Strahlungsbilanz. Die Größe der Proportionalitätskonstante bestimmt die sogenannte Klimasensitivität. Letztere wird oft als Änderung der Gleichgewichtsbodentemperatur definiert, als Antwort auf eine CO_2 -Verdoppelung (z.B. Solomon et al., 2007). Ist die Proportionalitätskonstante von Art, Größe und Ort der Störung unabhängig, so kann dem Klimasystem eine universelle Klimasensitivität zugeordnet werden (siehe Abschnitt 2.1.2). Für die gegenwärtige Generation von Klimamodellen ist jedoch der Response auf ein und denselben Strahlungsantrieb modellabhängig. In diesem Sinne besitzt jedes dieser Modelle seine eigene Klimasensitivität.

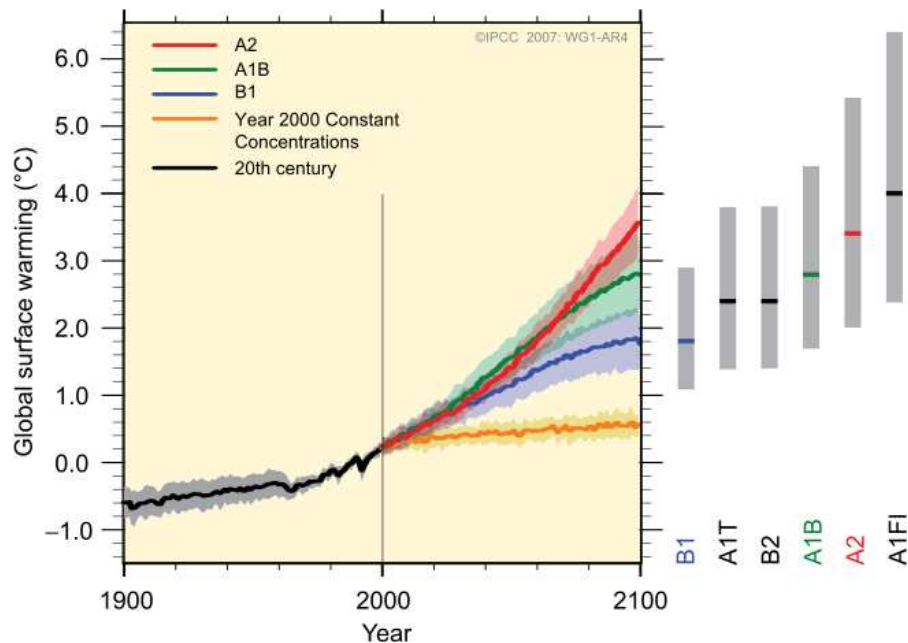


Abbildung 1.2: Projektion der künftigen Entwicklung der globalen Bodentemperatur und ihre Unsicherheit auf Grund der Verwendung unterschiedlicher Szenarien und Modelle. Durchgezogene farbige Kurven stellen die globalen Multi-Modell-Mittelwerte (bezogen auf 1980-1999) für die 6 zentralen Emissionsszenarien des AR4 dar. Die orangefarbene Linie zeigt ein Experiment bei dem die Konzentrationen ab dem Jahr 2000 konstant gehalten werden. Der schattierte Bereich gibt die statistische Unsicherheit (gezeigt als eine Standardabweichung) der individuellen Modelle an. Die rechte Seite der Abbildung zeigt die beste Schätzung der globalen Bodentemperaturänderung, dargestellt als durchgezogene Linie innerhalb des grauen Balkens sowie den wahrscheinlichen Wertebereich (grauer Balken) für die 6 verschiedenen Szenarien (berechnet aus der Differenz der Bodentemperatur der Jahre 2090-2099 und 1980-1999). Darstellung nach Meehl et al. (2007).

Mittels Emissionsszenarien, die die Emissionen der Treibhausgase für die Zukunft beschreiben, können mit Modellsimulationen Aussagen über eine zukünftige Änderung der Temperatur getroffen werden. Die in AR4 verwendeten Emissionsszenarien sind im Detail im 'Special Report on Emission Scenarios' dokumentiert (Nakicenovic und Swart, 2000). Abbildung 1.2 beschreibt die, in AR4 bestimmte, zu erwartenden Entwicklung der globalen Bodentemperatur und ihre Unsicherheiten für die sechs zentralen IPCC-Emissionsszenarien. Dieses Ergebnis basiert auf Simulationen mit einer Vielzahl von Klimamodellen. Zusätzlich wurden Simulationen durchgeführt, in denen die Konzentrationen auf das Jahr 2000 fixiert wurden. Auch für diesen Fall ist eine weitere Erwärmung nach dem Jahr 2000 zu verzeichnen, da das Klimasystem zu diesem Zeitpunkt noch nicht sein Gleichgewicht erreicht hatte, d.h. noch eine unausgeglichene Strahlungsbilanz aufwies. Die rechte Seite von Abbildung 1.2 zeigt die beste Abschätzungen für die zu erwartende Erwärmung in der globalen Bodentemperatur und ihre Unsicherheiten. Der Modellmittelwert für das Jahr 2100 sagt eine Erwärmung von 1.8 °C im niedrigsten Emissionsszenario und von 4.0 °C für das höchste Emissionsszenario voraus (Solomon et al., 2007).

Für AR4 wurde eine größere Anzahl von Simulationen mit einer größeren Menge von Klimamodellen durchgeführt als für die vorigen IPCC-Sachbestandsberichte. Die Modellentwicklung hin zu komplexeren und realistischeren Modellen wurde vollzogen. Zusätzlich waren neue Informationen aus Beobachtungen zur Validierung der neuen Modellgeneration verfügbar. Trotzdem bleibt die Modellabhängigkeit der Klimasensitivität hoch und stellt die größte Quelle für die Unsicherheiten in der Vorhersage der zukünftigen Temperaturentwicklung dar (Solomon et al., 2007), was auch in Abbildung 1.2 deutlich zu erkennen ist. Die Klimasensitivität ist keine direkt messbare Größe, da das Klimasystem in der Realität immer Änderungen unterliegt und somit ein Gleichgewicht nicht erreicht wird. Wie einige Studien (z.B. Wigley et al., 1997; Knutti et al., 2002) zeigen, ist es aber trotzdem möglich, die Klimasensitivität des Klimasystems über die beobachtete Erwärmung der Boden- und Ozeantemperatur des 20. Jahrhunderts und einer Schätzung des Strahlungsantriebs zu bestimmen. Die Unsicherheiten der verwendeten Parameter führen aber dazu, dass die so bestimmte Klimasensitivität keine genauere Abschätzung liefert als die Schwankungsbreite der verschiedenen Klimamodelle (Knutti und Hegerl, 2008).

Die starke Variabilität der Klimasensitivität in den Klimamodellen entsteht durch die unterschiedlich parametrisierten und unterschiedlich wirkenden internen Prozesse im Klimasystem. Diese Prozesse können den Klimaresponse einer externen Störung entweder dämpfen oder verstärken. Sie werden als Klimarückkopplungen bezeichnet. Jede Klimavariablen, die auf die Änderung der globalen Bodentemperatur durch physikalische oder chemische Prozesse reagiert und den Strahlungshaushalt des Systems Erde-Atmosphäre beeinflusst, kann als Klimarückkopplung wirken (Bony et al., 2006). Beispiele für physikalische Rückkopplungsmechanismen sind die Rückkopplungen über den Wasserdampf, die Bodenalbedo, das troposphärische Temperaturprofil und die Wolken. Modellstudien bieten die Möglichkeit, Rückkopplungsprozesse zu verstehen und die Rückkopplungsstärke mittels einer Rückkopplungsanalyse zu bestimmen. Neuere prozessbasierte Modellstudien (z.B. Colman, 2003; Soden und Held, 2006; Bony et al., 2006), die physikalische Rückkopplungsmechanismen in mehreren Klimamodellen analysieren und vergleichen, zeigen, dass die Größe der einzelnen Rückkopplungsmechanismen stark modellabhängig ist, wobei die Wolkenrückkopplungen die größte Unsicherheit in den Modellen aufweisen. Bereits die grundlegenden Studien von Cess et al. (1989, 1990) schreiben den Grund für die große Bandbreite der Klimasensitivität vor allem den Wolken zu. Dies wurde durch entsprechende Untersuchungen mit neueren Modellen bestätigt (z.B. Colman, 2003; Soden und Held, 2006; Ringer et al., 2006).

Um die Klimasensitivität eines Modells zuverlässiger bestimmen zu können, ist es wichtig, das Prozessverständnis von Rückkopplungsmechanismen weiter zu erhöhen und das extrem komplexe Verhalten des Systems Erde-Atmosphäre unter Einschluss aller relevanten Wechselwirkungen korrekt zu simulieren. Durch zahlreiche experimentelle, numerische und theoretische Studien wurden Fortschritte im Verständnis von physikalischen Mechanismen erreicht, die hinter der Abschätzung der Klimarückkopplungen stehen (Bony et al., 2006). Somit wurde eine verbesserte Grundlage zur Bestimmung von Modellunterschieden erlangt und Hinweise wurden gesammelt, wie Rückkopplungsmechanismen mit Beobachtungen am besten zu evaluieren sind. Die im beobachteten Klimasystem wirkenden Rückkopplungen sind ebenso wenig wie der Gleichgewichtsresponse exakt messbar. Beobachtungen ermöglichen es jedoch, die Glaubwürdigkeit der in Modellen beschriebenen Rückkopplungsprozesse

zu überprüfen. So gibt es zum Beispiel beobachtungsbasierte Methoden, um die Wolkenparametrisierung zu evaluieren (Stephens, 2005).

Ein verlässliches Klimamodell sollte im Idealfall Rückkopplungsprozesse richtig und vollständig beschreiben, um die Klimasensitivität des beobachteten Klimasystems möglichst realistisch reproduzieren zu können. Der Stand der Modellentwicklung ermöglicht es, konventionelle Klimamodelle durch komplexere Modelle wie interaktiv gekoppelte Klima-Chemie-Modelle, bis hin zu vollständigen Erdsystemmodellen zu ersetzen. Klima-Chemie-Modelle bieten die Möglichkeit die zukünftige Entwicklung des Klimas und der atmosphärischen Zusammensetzung abzuschätzen, da sie das beobachtete Klimasystem vollständiger beschreiben. Sie liefern außerdem ein verbessertes Prozessverständnis von atmosphärischen Vorgängen und ihrer Bedeutung für das Klimasystem. Modellstudien mit gekoppelter Atmosphärenchemie zeigen, dass zukünftige Klimaänderungen die Konzentrationen von strahlungsaktiven Gasen (Ozon, Lachgas, Methan) signifikant verändern können (z.B. Grewe et al., 2001b; Stevenson et al., 2005; Johnson et al., 1999; Isaksen et al., 2009). So ändern sich einige chemische Reaktionen mit der Temperatur oder das Auswaschen von wichtigen chemischen Komponenten verändert sich durch einen geänderten hydrologischen Zyklus. Außerdem zeigen Klimasimulationen verstärktes Aufsteigen in der tropischen unteren Stratosphäre in Folge einer Erwärmung (Garny, 2010), was zu einer Umverteilung der strahlungsaktiven Gase führt.

Strahlungsaktive Gase bewirken also im Klima-Chemie-Modellsystem nicht nur einen Strahlungsantrieb, sondern reagieren auch auf die ausgelöste globale Klimaänderung als Folge von geänderten chemischen Reaktionen und geändertem Transport. Oder, anders ausgedrückt, sie stellen zusätzliche Strahlungsrückkopplungen dar, die in herkömmlichen Modellen nicht wirksam waren.

Durch die rasche Entwicklung der Leistungsfähigkeit moderner Computer ist es heutzutage möglich, Klimasensitivitätsstudien, die typischerweise über einen Zeitraum von 50 Simulationsjahren laufen, mit komplexeren Modellen durchzuführen. Die Idee der vorliegenden Arbeit ist, Klimagleichgewichtssimulationen mit einem gekoppelten Klima-Chemie-Modellsystem mit Deckschichtozean durchzuführen, um den Einfluss von chemischen und physikalischen Rückkopplungen zu untersuchen. Dieser Ansatz wurde bereits in der Studie von Raes et al. (2010) verfolgt. Die vorliegende Arbeit verwendet aber ein Modellsystem von größerer Komplexität und verfolgt eine andere Strategie für das Verständnis der chemischen Rückkopplungen.

Im Zentrum meiner Arbeit stehen folgende Fragenstellungen:

- Wie verhält sich der Response strahlungsaktiver Gase und physikalischer Klimaparameter in Klimaänderungsexperimenten mit interaktiver Chemie?
- Wie groß ist die Rückkopplungsstärke von strahlungsaktiven Gasen im Vergleich zu physikalischen Rückkopplungen?
- Wie variieren chemische Rückkopplungen bei geänderter Antriebsstärke und -art?
- Welchen Einfluss haben Rückkopplungen über strahlungsaktive Gase auf die Klimasensitivität des Modellsystems?

Diese Arbeit ist wie folgt aufgebaut: **Kapitel 2** stellt die für das Verständnis grundlegende Begriffe des Strahlungsantriebs, der Klimasensitivität und der Strahlungsrückkopplung vor. Außerdem erfolgt eine ausführliche Beschreibung der Ozonchemie in Stratosphäre und Troposphäre sowie der Klima-Chemie-Wechselwirkungen in einem geänderten Klima. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurde das Klima-Chemie-Modellsystem EMAC (ECHAM5/MESSy Atmospheric Chemistry) mit gekoppeltem Deckschichtozean und interaktiver Chemie eingesetzt. Die drei Komponenten Klimamodell, Chemiemodul und Deckschichtozean werden im **Kapitel 3** näher beschrieben. Im Anschluss an die Modellsystembeschreibung folgt in **Kapitel 4** die zusammenfassende Beschreibung der durchgeführten Klimagleichgewichtsexperimente. Bevor die Beschreibung und Interpretation der Ergebnisse dieser Klimagleichgewichtsexperimente erfolgt, wird näher auf eine alternative Möglichkeit zur Trennung von Strahlungsantrieb und Response, die sogenannte Gregory-Approximation, eingegangen (**Kapitel 5**). Die Darstellung von Ergebnissen der CO₂-Erhöhungsexperimente erfolgt in **Kapitel 6**. Zuerst wird der Gleichgewichtsresponse strahlungsaktiver Spurenstoffe und physikalischer Klimaparameter beschrieben. Des Weiteren wird die Rückkopplungsstärke von Ozon, Methan und Lachgas bestimmt und in Relation zur physikalischen Rückkopplungsstärke gesetzt. **Kapitel 7** stellt dann die durch anthropogene NO_x- und CO-Emissionen angetriebene Klimagleichgewichtsexperimente vor und vergleicht sie mit den Ergebnissen der CO₂-Experimente. **Kapitel 8** diskutiert, inwieweit Rückkopplungen über die strahlungsaktiven Spurengase die Klimasensitivität des verwendeten Modellsystems beeinflussen. Den Abschluss dieser Arbeit bilden eine Zusammenfassung der Ergebnisse und ein Ausblick (**Kapitel 9**).

Kapitel 2

Theorie

Dieses Kapitel gibt als Erstes einen Überblick über die Begriffe Strahlungsantrieb, Klimaresponse, Strahlungsrückkopplung und Klimasensitivität, die für diese Arbeit von grundlegender Bedeutung sind. Des Weiteren werden Methoden vorgestellt, um die Strahlungsrückkopplungen aus Simulationen eines Klimamodells zu bestimmen. Der letzte Abschnitt des Kapitels fasst die wichtigsten, für diese Arbeit relevanten Reaktionen der Atmosphärenchemie zusammen und beschreibt den Einfluss von Klimaänderungen auf die Atmosphärenchemie.

2.1 Strahlungsantrieb, Rückkopplungen und Klimasensitivität

Zunächst (Abschnitt 2.1.1) wird das Konzept des Strahlungsantriebs als Metrik für den zu erwartenden Klimaresponse vorgestellt. Hierbei werden auch die verschiedenen Definitionen des Strahlungsantriebs beschrieben und des Weiteren die Grenzen dieses Konzeptes diskutiert. Abschnitt 2.1.2 befasst sich mit der Theorie von Rückkopplungen in Klimamodellen und ihrem Einfluss auf die Klimasensitivität.

2.1.1 Strahlungsantrieb und Klimaresponse

Um die Klimawirkung strahlungsaktiver Substanzen zu vergleichen und zu quantifizieren, wird in vielen Fällen der Strahlungsantrieb verwendet (siehe Kapitel 1). Der Strahlungsantrieb (engl: radiative forcing) ist definiert als die Nettostrahlungsflussänderung (in Wm^{-2}) in Folge einer externen Störung, in einem bestimmten Niveau, üblicherweise an der Tropopause oder alternativ auch am Oberrand der Atmosphäre (TOA). Hierbei kann es sich zum Beispiel um eine Änderung der Konzentration eines strahlungsaktiven Gases oder um eine Änderung der solaren Einstrahlung handeln. Im langzeitlichen globalen Mittel ist die solare kurzzeitige

Strahlung, die vom System Erde-Atmosphäre absorbiert wird und die Emission der terrestrischen Strahlung (im infraroten Spektralbereich) in den Weltraum ausgeglichen. War das Klimasystem vor Eintreten der Störung also im globalen Strahlungsgleichgewicht, bewirkt der Eintrag einer strahlungswirksamen Substanz, dass sich die Menge der aufgenommenen und abgegebenen Strahlung verändert, was zu einem Ungleichgewicht in der Strahlungsbilanz führt. Dieses wird dann als Strahlungsantrieb bezeichnet. Um das im langzeitlichen Mittel existierende globale Gleichgewicht wiederherzustellen ändert sich die Temperatur von Erdoberfläche und Troposphäre. Diese sind durch konvektive Mischungsprozesse, die innerhalb kurzer Zeit ablaufen, eng aneinander gekoppelt.

Der Strahlungsantrieb, ausgelöst durch eine externe Störung, führt u.a. zu einer Änderung der global gemittelten bodennahen Temperatur T_{surf} . Dabei bedeutet ein positiver Strahlungsantrieb einen Energiegewinn für das System Erdboden-Troposphäre und bewirkt eine Erwärmung. Die Änderung der bodennahen Gleichgewichtstemperatur ΔT_{surf} kann linear mit dem globalen Strahlungsantrieb RF verknüpft werden, wobei die Proportionalitätskonstante λ Klimasensitivitätsparameter genannt wird:

$$\Delta T_{surf} = \lambda * RF \quad (2.1)$$

Der Klimasensitivitätsparameter gibt die Änderung der Bodentemperatur pro Einheit Strahlungsantrieb an. Bei dem linearen Zusammenhang zwischen Antrieb und Klimawirkung der Gleichung 2.1 handelt es sich um eine empirische Beziehung, die in verschiedenen Modellstudien mit erhöhten CO₂-Konzentrationen oder veränderter solarer Einstrahlung gefunden wurde (z.B. Hansen et al., 1984, 1997; Cess et al., 1985).

Mehrere Definitionen des Strahlungsantriebs sind in Gebrauch. Sie sind in Abbildung 2.1 zusammengefasst und unterscheiden sich dadurch, dass die Modellatmosphäre in unterschiedlicher Weise auf die Störung reagieren kann bevor die Strahlungsbilanzänderung bestimmt wird. Hierzu zählen der instantane Strahlungsantrieb, der stratosphären-adjustierte Strahlungsantrieb und der Strahlungsantrieb bei festgehaltener Bodentemperatur (zero-surface temperature change). Demgegenüber steht der Gleichgewichtszustand nach Eintreten des Klimaresponses (einschließlich der Bodentemperaturänderung ΔT_{surf}) nach dessen Eintritt der Strahlungsantrieb wieder auf Null zurückgegangen ist (rechte Darstellung in Abbildung 2.1). Seit dem IPCC-Bericht von 1990 ist der stratosphären-adjustierte Strahlungsantrieb an der Tropopause als geeignete Metrik für die zu erwartenden Klimaänderung in Gebrauch, er wird auch in dieser Arbeit verwendet. Er ist definiert als die Änderung der Nettostrahlung, nachdem sich die Stratosphärentemperatur an das neue Gleichgewicht angepasst hat, während die Bodentemperatur und das Temperaturprofil der Troposphäre auf die nicht gestörten Werte fixiert werden (z.B. Solomon et al., 2007). Die Dynamik der Stratosphäre bleibt dabei unbeeinflusst. Dieses Konzept wird deshalb auch 'fixed dynamical heating concept' genannt (Ramanathan und Dickinson, 1979; Fels et al., 1980). Der stratosphären-adjustierte Strahlungsantrieb erweist sich als sehr geeignet, um die lineare Approximation in Gleichung 2.1 mit einem nahezu konstanten Klimasensitivitätsparameter zu gewährleisten. Der schnelle Rückkopplungsprozess über die Stratosphärentemperatur wird zum Strahlungsantrieb gezählt, da die Stratosphärentemperatur sich in der Regel innerhalb nur weniger Wochen an das neue Gleichgewicht anpasst hat (Hansen et al., 1997), während das gekoppelte

System Erde-Troposphäre-Ozean das neue Temperaturgleichgewicht erst nach mehreren Dekaden erreicht, aufgrund der großen Wärmekapazität der Ozeane (Hansen et al., 1984).

Aus praktischer Sicht handelt es sich beim Konzept des stratosphären-adjustierten Strahlungsantriebs um eine einfache Maßzahl, die den Gleichgewichtsklimareponse von verschiedenen klimarelevanten Substanzen quantifiziert und untereinander vergleicht. Er hat den Vorteil, dass er genau mit Strahlungstransfermodellen berechnet werden kann und auch für kleine Störungen anwendbar ist, deren Effekt in einer Klimamodellsimulation im Rauschen des Temperatursignals untergehen würden. Außerdem ist die Umrechnung in die Änderung der global gemittelten Gleichgewichtstemperatur am Erdboden ΔT_{surf} leicht möglich (Solomon et al., 2007).

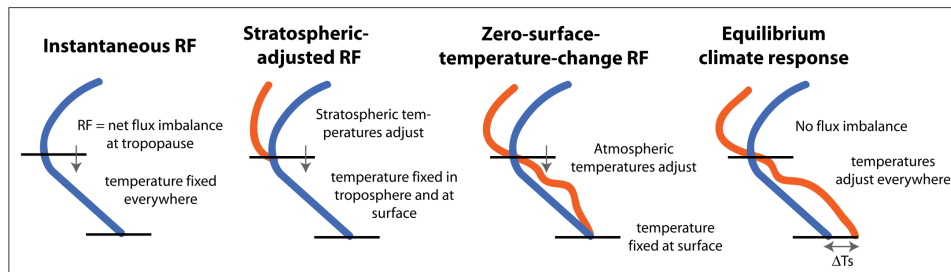


Abbildung 2.1: Unterschiedliche Methoden zur Berechnung des Strahlungsantriebs: Der Strahlungsantrieb wird als die Nettostrahlungsungleichgewicht an der Tropopause definiert. Das ungestörte Temperaturprofil ist blau, das gestörte Temperaturprofil rot dargestellt. Von links nach rechts: instantaner Strahlungsantrieb (Temperatur wird überall festgehalten), stratosphären-adjustierter Strahlungsantrieb (Stratosphärentemperatur darf sich an neues Gleichgewicht anpassen), zero-surface-temperature-change (Atmosphärentemperatur kann sich überall anpassen, außer am Boden). Im vollen Klimareponse kann sich die Temperatur überall anpassen, es verbleibt dann keine Strahlungsungleichgewicht an der Tropopause. Darstellung entnommen aus Solomon et al. (2007).

Gleichung 2.1 ist gut erfüllt für homogene CO_2 -Änderungen, hier bleibt erfahrungsgemäß der Klimasensitivitätsparameter innerhalb einer Modellkonfiguration bei Antrieben kleiner als 8 Wm^{-2} weitgehend konstant (z.B. Hansen et al., 2005; Gregory und Webb, 2007). Zwischen unterschiedlichen Modellen kann der Klimasensitivitätsparameter seinem Wert nach sehr schwanken (siehe Kapitel 1). Die Anwendbarkeit der linearen Approximation stößt aber auch innerhalb eines Modellsystems auf seine Grenzen. Für manche strahlungsaktive Gase, wie zum Beispiel Ozon- und Aerosolstörungen, weicht der Klimasensitivitätsparameter eines Modells stark vom Klimasensitivitätsparameter für CO_2 ab (z.B. Hansen et al., 1997; Cook und Highwood, 2003; Stuber et al., 2001; Yoshimori und Broccoli, 2008). Um diese Abweichungen mit dem Grundkonzept verträglich zu machen, wurden für jede einzelne strahlungsaktive Substanz eine sogenannte Wirkungseffizienz (engl: 'efficacy' parameter) eingeführt (Joshi et al., 2003; Hansen et al., 2005). Diese Parameter sind definiert als $r_i = \frac{\lambda_i}{\lambda_{\text{CO}_2}}$ und charakterisieren die Abweichung des Klimasensitivitätsparameters einer Substanz i , λ_i , im Bezug auf den Klimasensitivitätsparameter von CO_2 , λ_{CO_2} . So ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$\Delta T_{surf}^i = r_i * \lambda_{\text{CO}_2} * RF^i \quad (2.2)$$

Die Wirkungseffizienz kann dann auch benutzt werden, um einen effektiven Strahlungsantrieb zu definieren (r_iRF_i). In den Studien von Hansen et al. (2005) und Stuber et al. (2005) wurden deutlich unterschiedliche Wirkungseffizienzen für verschiedene Antriebe gefunden. Speziell die Wirkungseffizienzen von Ozon, Aerosolen und Methan weichen von eins ab. Joshi et al. (2003) stellen die Hypothese auf, dass die Wirkungseffizienz einzelner Antriebe weniger modellabhängig ist als die Klimasensitivität selbst. Wenn es für jede Störung eine einheitliche Wirkungseffizienz gibt und diese nur im geringen Ausmaß vom verwendeten Modell abhängt, bleibt der Strahlungsantrieb eine gut geeignete Metrik (Hansen et al., 2005). Im Fall von vertikal und horizontal nicht homogenen Störungen scheint das oben genannte Konzept der konstanten Klimasensitivität häufig zu versagen. So wurde für inhomogene idealisierte Ozonstörungen gezeigt, dass Ozon eine höhere Sensitivität hat, wenn die Konzentrationsstörung in der unteren Stratosphäre auftritt und eine geringere Sensitivität hat, wenn die Störung in der oberen Troposphäre auftritt (Stuber et al., 2005). Befasst man sich z.B. mit verkehrsbezogenen Emissionen, die in ihrer Natur zeitlich und örtlich inhomogen sind, ist auch hier das Konzept der konstanten Klimasensitivität nicht anwendbar (z.B. Ponater et al., 2006). Ponater et al. (2009) zeigen allerdings in ihrer Arbeit, dass

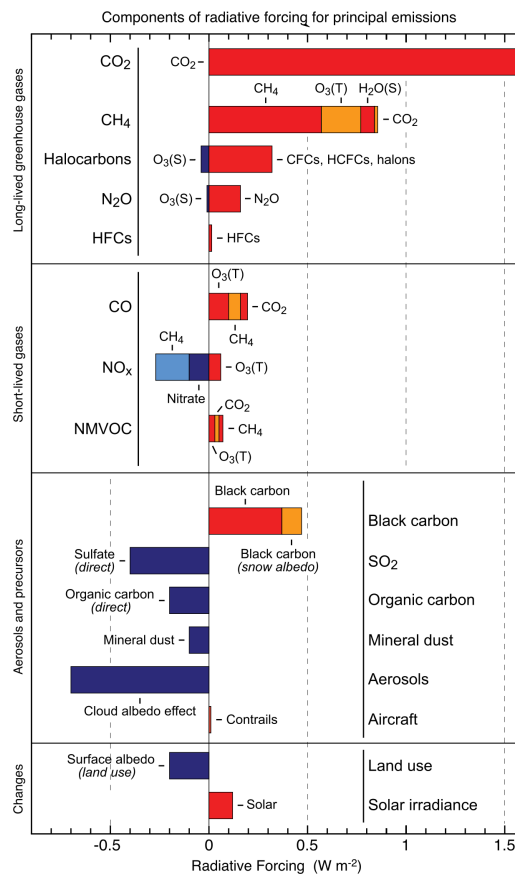


Abbildung 2.2: Beiträge der Primäremissionen zum gesamten global gemittelten Strahlungsantrieb. Die Werte zeigen den stratosphären-adjustierten Strahlungsantrieb an der Tropopause von 2005 relativ zu 1750. Darstellung nach Solomon et al. (2007).

die Klimasensitivität für realistisch simulierte verkehrsbezogene Ozonstörungen, die durch Emissionen von Luftverkehr, Schiffsverkehr und Straßenverkehr hervorgerufen werden um weniger als 10% von der Klimasensitivität von CO₂ abweicht. Das ist sehr viel weniger als in früheren Studien für idealisierte Ozonstörungen gezeigt wurde (z.B. Stuber et al., 2005). Dies ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, dass die verkehrsbezogenen Ozonstörungen, die in der Studie von Ponater et al. (2009) verwendet werden, sehr viel glatter sind, als die auf wenige Modellniveaus beschränkten Störungen von früheren Arbeiten.

Da sich die vorliegende Arbeit auch mit Klimasimulationen befassen wird, die mit einem interaktiven Klima-Chemie-Modell indirekt über die Emissionen von Vorläufersubstanzen angetrieben werden, sei noch auf eine diesbezügliche Besonderheit der Zählung von Strahlungsantrieben hingewiesen: In der Einleitung der vorliegenden Arbeit (Abbildung 1.1) wurde bereits beschrieben, wie sich die Strahlungsantriebe von klimarelevanten Substanzen auf der Basis von Konzentrationsänderungen verhalten. Der Strahlungsantrieb einer strahlungsaktiven Substanz kann aber auch Beiträge von verschiedenen Emissionen enthalten (Shindell et al., 2005). Zum Beispiel ist der Strahlungsantrieb von CH₄ sowohl durch CH₄-Emissionen als auch durch NO_x-Emissionen bestimmt. Normalerweise wird der Strahlungsantrieb so angegeben, dass er beide Effekte enthält (wie bereits in Abbildung 1.1 dargestellt). Für eine angemessene Bewertung der Primäremissionen kann aber auch die Darstellungsform von Abbildung 2.2 nützlich sein. Hier ist der Strahlungsantrieb, die Primäremission verursacht wird, quantifiziert. Diese Darstellungsweise zeigt, dass der Beitrag der Primäremissionen zum Strahlungsantrieb von langlebigen Treibhausgasen (CO₂, CH₄, N₂O, FCKW), vor allem von Aerosolen und Aerosolvorläufersubstanzen und von Ozonvorläufersubstanzen und Ozonzerstörenden Substanzen bestimmt ist.

2.1.2 Klimasensitivität und Klimarückkopplungen

Da die vorliegende Arbeit sich vor allem mit der Rolle von Rückkopplungen im Klimasystem und ihrem Einfluss auf die Klimasensitivität befasst, soll die zugehörige Theorie hier ausführlich dargestellt werden. Die Klimasensitivität ist eine Metrik, um den Response des globalen Klimasystems auf einen vorgegebenen Antrieb zu bestimmen. Im IPCC-Bericht von 2007 ist sie definiert als die Änderung der globalen Bodentemperatur in Folge einer CO₂-Verdoppelung, nachdem das System ein neues Gleichgewicht erreicht hat. Sie wird auch als Gleichgewichtsklimasensitivität (engl: equilibrium climate sensitivity) bezeichnet. Diese schärfere Definition der Gleichgewichtsklimasensitivität unter einer CO₂-Verdoppelung wurde vom IPCC gewählt um das bestehende Problem der Abhängigkeit der Klimasensitivität von der Art der Störung zu umgehen (siehe voriger Abschnitt). In transienten Klimasimulationen, die kein Gleichgewicht erreichen, wird der transiente Klimaresponse als Änderung der globalen Bodentemperatur, gemittelt über eine 20 Jahresperiode, zentriert zum Zeitpunkt der CO₂-Verdoppelung in einem Szenario in dem CO₂ 1% pro Jahr zunimmt, verwendet (Solomon et al., 2007). Daraus ergibt sich die sogenannte effektive Klimasensitivität. Im Rahmen dieser Arbeit, in welcher Sensitivitätsstudien mit verschiedenen Störungen durchgeführt werden, wird der Begriff der Gleichgewichtsklimasensitivität aber für die Änderung der Bodentemperatur aufgrund einer beliebigen Störung verwendet.

Wie bereits in Kapitel 2.1.1 beschrieben ist die Klimasensitivität und somit auch der Klimasensitivitätsparameter λ eine modellabhängige Größe (z.B. Cess et al., 1996; Solomon et al., 2007). Im IPCC-Bericht von 2007 wird die Schwankung der Gleichgewichtsklimasensitivität für verschiedene Klimamodelle mit einem Wertebereich von 2.1 bis 4.4 °C angegeben. Die großen Schwankungen in der Klimasensitivität einzelner Modelle führen dazu, dass die Klimasensitivität für unterschiedliche Zukunftsszenarien stark streut (siehe auch Abbildung 1.2 in Kapitel 1).

Unterschiede in der Klimasensitivität von Klimamodell zu Klimamodell lassen sich auf das unterschiedliche Wirken von Rückkopplungsmechanismen in verschiedenen Modellen zurückführen. Eine detaillierte Diagnose von Rückkopplungen ist daher notwendig um ein besseres Verständnis der Modellabhängigkeit der Klimasensitivität zu erreichen. Eine Erwärmung bzw. eine Abkühlung des Systems Erde-Atmosphäre führt zu internen Rückkopplungsprozessen. Jede Klimavariablen, die auf eine Änderung der Bodentemperatur durch physikalische oder chemische Prozesse reagiert und die direkt oder indirekt den Strahlungshaushalt der Erde beeinflusst, hat das Potential für eine Rückkopplung im Klimasystem (Bony et al., 2006). Diese Rückkopplungen können eine initiale Erwärmung oder Abkühlung (allg. Response) verstärken (positive Rückkopplung) oder dämpfen (negative Rückkopplung). Zu den wichtigsten physikalischen Rückkopplungsmechanismen zählen die Wasserdampfrückkopplung, die Wolkenrückkopplung, die Eis-Albedo-Rückkopplung und die Rückkopplung über das troposphärische Temperaturprofil, im Folgenden als Lapse-rate-Rückkopplung bezeichnet. Die Lapse-rate-Rückkopplung beruht darauf, dass bei unveränderter Verteilung eines strahlungsaktiven Spurengases, aber bei geändertem vertikalem Temperaturprofil, die Strahlungswirkung dieser Gase verändert wird. Ein Beispiel für eine positive, verstärkende Rückkopplung ist die Wasserdampfrückkopplung. In einem wärmeren Klima nimmt die Konzentration des Wasserdampfes zu (nahezu exponentielle Zunahme des Sättigungsdampfdrucks mit der Temperatur, zugrundeliegend ist die Clausius-Claperyon-Gleichung), und da Wasserdampf ein Treibhausgas ist, d.h. im Langwelligen absorbiert, kommt es zu einer zusätzlichen Erwärmung.

Die im Folgenden beschriebene Theorie über Rückkopplungen ist in ähnlicher Form bei Stuber (2001) zu finden und wurde erstmals in der Arbeit von Schlesinger (1988) vorgestellt. Zuerst soll das Klimasystem ohne Rückkopplung beschrieben werden (siehe Abbildung 2.3 a). Hier bewirkt der durch eine externe Störung induzierte Strahlungsantrieb eine Änderung der globalen Bodentemperatur ΔT_{surf} . Der linearisierte Zusammenhang ist durch folgende Gleichung beschrieben:

$$\Delta T_{surf}^0 = \lambda_0 * RF \quad (2.3)$$

λ_0 ist der Klimasensitivitätsparameter ohne das Wirken von Rückkopplungen (engl: 'no feedback climate sensitivity') und ein Maß für den Gewinn des Klimasystems ausschließlich auf Grund des Energiegewinns durch den Strahlungsantrieb.

Das Klimasystem mit Rückkopplungen lässt sich graphisch durch eine Rückkopplungsschleife veranschaulichen. Abbildung 2.3 b) zeigt das Beispiel einer Rückkopplungsschleife. Die Abbildung veranschaulicht, dass die Klimaänderung (ΔT_{surf}) über die Rückkopplungsschleife

zurück zum Klimaantrieb wirkt. Die lineare Approximation im Klimasystem mit Rückkopplungen, in dem der gesamte Klimaantrieb J wirkt, kann wie folgt beschrieben werden:

$$\Delta T_{surf} = \lambda_0 * J \quad (2.4)$$

Der gesamte Klimaantrieb J setzt sich aus dem externen Antrieb RF und dem internen Antrieb ΔJ zusammen ($J = RF + \Delta J$). Der interne Antrieb ΔJ , welcher durch die Rückkopplungen im System bestimmt ist, wird als proportional zur globalen Bodentemperaturänderung angenommen, da von kleinen Störungen des Systems auszugehen ist.

$$\Delta J = \alpha * \Delta T_{surf} \quad (2.5)$$

Die Proportionalitätskonstante α wird als Rückkopplungsparameter bezeichnet. Unter der Annahme, dass die individuellen Rückkopplungen voneinander unabhängig sind, kann die Summe aller physikalischen Rückkopplung wie folgt geschrieben werden:

$$\alpha_{phys} = \sum_i \alpha_i = \alpha_C + \alpha_q + \alpha_{LR} + \alpha_a \quad (2.6)$$

Hier bezeichnet α_C die Rückkopplung über die Wolken, α_q die Rückkopplung über den Wasserdampf, α_{LR} die Rückkopplung über die Lapse-rate und α_a die Rückkopplung über die Albedo. Formt man die Gleichungen 2.4 um, ergibt sich für ΔT_{surf} folgende Gleichung:

$$\Delta T_{surf} = \frac{\lambda_0}{1 - \lambda_0 * \alpha} * RF = \frac{\lambda_0}{1 - f} * RF = \lambda * RF \quad (2.7)$$

λ ist der bereits in Abschnitt 2.1.1 eingeführte Klimasensitivitätsparameter und die dimensionslose Größe $f = \lambda_0 * \alpha$ wird als Rückkopplungsfaktor bezeichnet. Sowohl in den weiter unten vorgestellten Studien als auch in dieser Arbeit wird der Rückkopplungsparameter α verwendet um die Stärke von Rückkopplungen quantitativ zu vergleichen. Andere Studien verwenden dafür den Rückkopplungsfaktor f . Ist $\alpha = 0$, liegt ein System ohne das Wirken von Rückkopplungen vor. Für einen positiven Rückkopplungsparameter ($\alpha > 0$), wird der Nenner in Gleichung 2.7 kleiner und verstärkt somit den Temperaturresponse im Vergleich zum Klimasystem ohne Rückkopplungen, somit ist die Rückkopplung verstärkend. Im Falle eines negativen Rückkopplungsparameters ($\alpha < 0$) wird der Temperaturresponse gedämpft wird.

In Klima-Chemie-Modellsystemen wirken neben den physikalischen Rückkopplungen auch die Rückkopplungen über strahlungsaktive Gase, somit können die Rückkopplungskomponenten vervollständigt werden (siehe Abbildung 2.3 c):

$$\alpha = \sum_i \alpha_i = \alpha_{phys} + \alpha_{chem} = \underbrace{\alpha_C + \alpha_q + \alpha_{LR} + \alpha_a}_{\alpha_{phys}} + \underbrace{\alpha_{O3} + \alpha_{CH4} + \alpha_{N2O} + \alpha_{FCKW}}_{\alpha_{chem}} \quad (2.8)$$

In einer Reihe von Studien wurden die physikalischen Rückkopplungen in Klimamodellen verglichen, sowohl für CO₂-Verdoppelungssimulationen (z.B. Colman, 2003) als auch für transiente Klimaänderungssimulationen (z.B. Soden und Held, 2006). Abbildung 2.4 zeigt Werte des Rückkopplungsparameters α_i (in Wm⁻²K⁻¹) sowie ihre Standardabweichung für

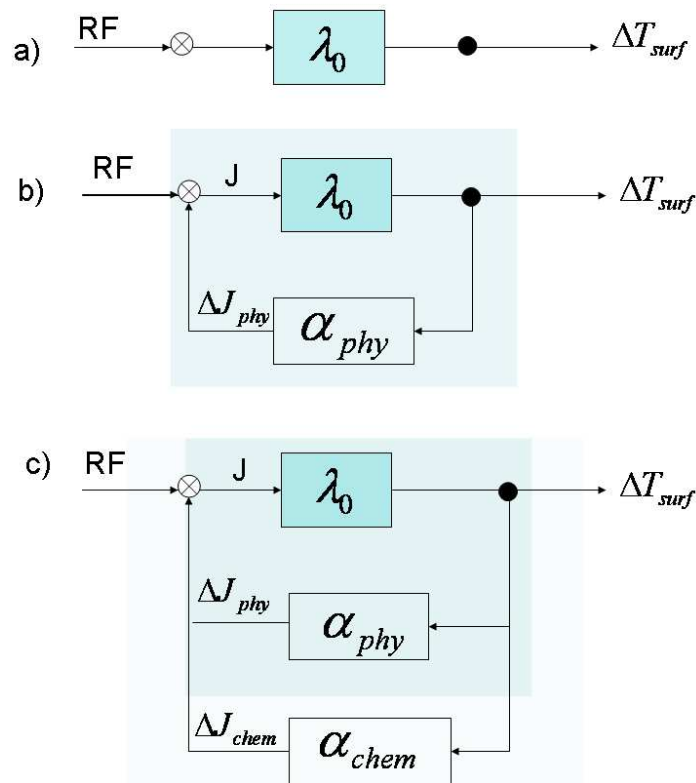


Abbildung 2.3: Blockdiagramm für a) das Klimasystem ohne Rückkopplungen, b) das Klimasystem in dem physikalische Rückkopplung wirken und c) das Klimasystem in dem physikalische und chemische Rückkopplung wirken. RF bezeichnet den Strahlungsantrieb, α den Rückkopplungsparameter, ΔT_{surf} die Bodentemperaturänderung, J den gesamten Klimaantrieb und ΔJ den internen Antrieb. Als Vorlage für dieses Diagramm dienten Stuber et al. (2005) und Raes et al. (2010).

die Wasserdampf-, Lapse-rate-, Albedo- und Wolkenrückkopplung, wie sie in den Studien von Colman (2003), Soden und Held (2006) und Winton (2006) abgeschätzt wurden. Alle Rückkopplungsparameter sind modellabhängig. Die Wasserdampfrückkopplung ist die stärkste Rückkopplung, mit einem Mittelwert über alle Modelle von $1.8 \pm 0.18 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$, gefolgt von der negativen Lapse-rate-Rückkopplung ($-0.84 \pm 0.26 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) und der positiven Albedo-Rückkopplung ($0.26 \pm 0.08 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$). Das Modellmittel der Wolkenrückkopplung ist mit $0.69 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ positiv, weist aber eine sehr starke Streuung von $\pm 0.38 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ zwischen den Modellen auf, und kann, je nach Modell positiv oder negativ sein (Bony et al., 2006). Die große Unsicherheit in der Wolkenrückkopplung führt zu dem Schluss, dass der unterschiedliche Response der Wolken für die starke Modellabhängigkeit der Klimasensitivität verantwortlich ist (Knutti und Hegerl, 2008). Diese Erkenntnis wurde bereits in früheren Studien gezogen (z.B. Cess et al., 1990, 1996; Stephens, 2005).

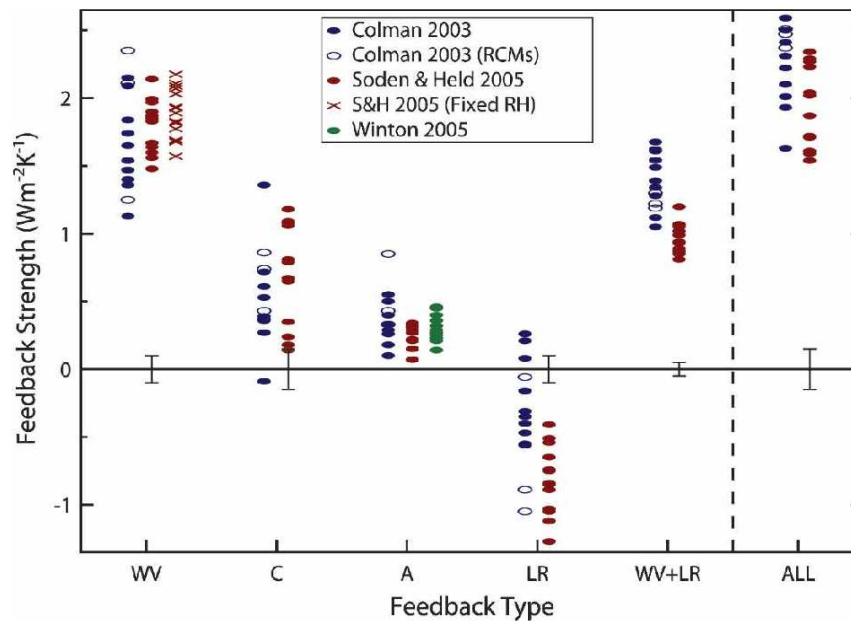


Abbildung 2.4: Physikalische Rückkopplungsparameter in $\text{Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ für Wasserdampf (WV), Wolken (C), Bodenalbedo (A), Lapse-rate (LR) und kombiniert Wasserdampf und Lapse-rate (WV+LR), berechnet in unterschiedlichen Modellen. Abbildung ist der Veröffentlichung von Bony et al. (2006) entnommen. Berechnungen gehen auf die Studien von Colman (2003), Soden und Held (2006) und Winton (2006) zurück.

2.2 Methoden der Rückkopplungsanalyse

Eine genaue Analyse von individuellen Rückkopplungsprozessen ist wichtig um die relative Bedeutung der einzelnen Prozesse zu bestimmen. In diesem Kapitel werden die unterschiedlichen Diagnoseverfahren zur Bestimmung der globalen Strahlungsrückkopplungen im Klimamodell beschrieben, wobei jede Methode ihre Vor- und Nachteile hat.

2.2.1 Traditionelle CRF-Methode

Eine Möglichkeit Rückkopplungen zu bestimmen ist die für die Wolkenstrahlungswirkung gebräuchliche Form des sogenannten Wolkenstrahlungsantriebes CRF (Cloud Radiative Forcing). Sie wurde zum Beispiel in den Studien von Cess et al. (1990, 1996) verwendet. Der Wolkenstrahlungsantrieb wird bestimmt als die Differenz zwischen den Strahlungsflüssen mit Wolken (all-sky) und ohne Wolken (clear-sky). Als Wolkenstrahlungsrückkopplung ΔCRF (Cloud Radiative Feedback) wird dann die Differenz des Wolkenstrahlungsantriebes im geänderten und im Referenzklima definiert. Das Ergebnis für die Wolkenrückkopplung, berechnet nach dieser Methode, ist nicht exakt. Es fließen hier, im Gegensatz zu den weiter unten beschriebenen Methoden, nicht nur die Änderungen der Wolkenparameter, sondern auch Änderungen verschiedener clear-sky Komponenten (z.B. Temperatur, Wasserdampf,

Bodenalbedo) ein. Somit erweist sich die Interpretation der Wolkenrückkopplung aus ΔCRF als schwierig, da die Rückkopplung nicht allein aufgrund der Änderung in den Wolkenparametern bestimmt wurde. Der Vorteil dieser Methode ist, dass das CRF eine im Modell leicht zu bestimmende Größe ist und auch mit Beobachtungen verglichen werden kann. Die Anwendung der CRF-Methode kann auch auf andere Parameter übertragen werden: so kann z.B. die Rückkopplung über Ozon durch die Bildung der Differenz des Nettostrahlungsantriebs von Ozon für den gestörten und ungestörten Fall bestimmt werden.

2.2.2 Stuber-Methode

Die von Stuber et al. (2001) eingeführte Methode der Rückkopplungsanalyse bestimmt den Beitrag einer individuellen Strahlungsrückkopplung diagnostisch aus den vom Klimamodell berechneten geänderten Parametern. Die jahresgemittelte Gleichgewichtsänderung einer Rückkopplungskomponente, z.B. die Änderung des Wasserdampf-mischungsverhältnisses, wird als Störung aufgefasst, und der aus dieser Störung resultierende sogenannte sekundäre stratosphären-adjustierte Strahlungsantrieb wird berechnet (Stuber, 2001). Dies geschieht in einer a posteriori durchgeführten kurzen Modellsimulation, in der das Differenzfeld aus dem Klimaänderungsexperiment auf die Hintergrundverteilung des Referenzmodells addiert und der sich daraus ergebende Strahlungsantrieb berechnet wird. Diese Methode liefert eine exakte Bestimmung einer einzelnen Rückkopplungskomponente, bei der die restlichen Klimaparameter konstant gehalten werden. Der Nachteil ist jedoch, dass sie nicht zur Bestimmung von Wolkenrückkopplungen angewendet werden kann, da auf die instantanen Wolkenparameter eine jahresgemittelte Störung nicht konsistent addiert werden kann. So ist zum Beispiel kein Zuwachs möglich, wenn der instantane Bedeckungsgrad eins ist. Die Rückkopplungsanalyse von Stuber et al. (2001) wird in der vorliegenden Arbeit für die Bestimmung der Rückkopplungsparameter der zeitlich wenig variablen Parameter wie Wasserdampf, Ozon, Methan und Lachgas angewandt.

2.2.3 'Partial Radiative Perturbation'-Methode

Die 'Partial Radiative Perturbation (PRP)'-Methode geht auf die Arbeit von Wetherald und Manabe (1988) zurück. Sie berechnet die partielle Ableitung des TOA-Strahlungsflusses im Bezug auf die Änderung eines Klimaparameters (z.B. Wasserdampf oder Wolken), indem der Strahlungscode eines Modells einzeln für jede dieser Änderungen nochmals durchlaufen wird. Der Rückkopplungsparameter α_x eines Modellparameters x ist berechnet durch $\alpha_x = (\partial R / \partial x)(dx / dT_{surf})$, wobei ∂R die Änderung der Strahlungsbilanz angibt. Man erhält ein exaktes Ergebnis für die Rückkopplungskomponenten, indem nur ein Parameter geändert wird und die restlichen festgehalten werden. Diese Methode wurde in vielen Studien, zur vollständigen Analyse aller in einem Modellsystem wirkenden Rückkopplungsgrößen angewendet. Ein Beispiel ist der in Abschnitt 2.1.2 vorgestellte Modellvergleich physikalischer Rückkopplungen (Bony et al., 2006). Der Vorteil dieses Ansatzes ist die exakte Separation

und Bestimmung jeder einzelnen Rückkopplungskomponente, vor allem der Strahlungseinfluss der Wolken allein ist im Gegensatz zu der oben beschriebenen CRF-Methode genau bestimmbar. Dieses Verfahren ist das aufwendigste, da der gesamte Datenoutput der zugrundeliegenden Klimasimulationen ein weiteres Mal mit Hilfe eines konsistenten Strahlungsmoduls durchgerechnet werden muss. Leider besteht auch bei dieser Methode keine Möglichkeit die Ergebnisse mit Beobachtungen zu validieren, da die aus Beobachtungen verfügbaren Strahlungsflüsse den Einfluss aller sich gleichzeitig verändernder und miteinander wechselwirkender Parameter einschließen.

2.3 Chemische Grundlagen

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden die für diese Arbeit relevanten chemischen Reaktionen erläutert. Der Schwerpunkt liegt hierbei in der Beschreibung der wichtigsten Prozesse der Ozonchemie, wobei auf die relevanten Reaktionen in Troposphäre und Stratosphäre eingegangen wird. Der zweite Abschnitt fasst den Stand des Wissens über den Einfluss von Klimaänderungen auf die Chemie zusammen.

2.3.1 Ozonchemie der Stratosphäre

Nahezu 90% der Gesamtozonmasse befindet sich in der Stratosphäre. Die dort stattfindende photochemische Produktion und Destruktion von Ozon wurde bereits 1930 von Chapman vorgestellt und wird als Chapman-Mechanismus bezeichnet. Ozon wird produziert, indem ein Sauerstoffmolekül durch ultraviolette Strahlung photolysiert wird und das daraus entstandene Sauerstoffatom O sich bei Anwesenheit eines Stoßpartners M mit O₂ verbindet (siehe Reaktion 2.9 und 2.10).



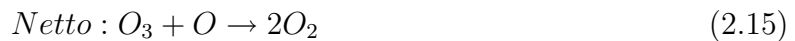
Dem entgegen wirkt ein Ozonabbaumechanismus, bei dem das entstandene Ozon durch ultraviolette Strahlung wieder zerlegt wird und ein Sauerstoffatom O und Sauerstoffmolekül O₂ entstehen (siehe Reaktion 2.11 und 2.12).



Dieser Mechanismus führt durch seinen ständigen Auf- und Abbau zu einem stationären Gleichgewicht von Ozon in der Stratosphäre. Die Produktion von Ozon findet vor allem in der tropischen mittleren Stratosphäre statt. Der Grund für die beobachtete geographische zonale Ozonverteilung, deren Maxima nicht mit den Maxima der Ozonproduktion über den

Chapman-Mechanismus übereinstimmen, ist die Umverteilung des Ozons durch die großskalige stratosphärische Zirkulation. Der mittlere meridionale Luftmassentransport in der Stratosphäre wird durch die sogenannte Brewer-Dobson-Zirkulation beschrieben, sie wurde nach den Arbeiten von Brewer (1949) und Dobson (1956) benannt. Sie stellt den wichtigsten Antrieb für den Transport von stratosphärischen Luftmassen aus niedrigen in höhere Breiten dar. Sie besteht aus dem Aufsteigen von Luftmassen in den Tropen, angetrieben durch die hochreichende tropische Konvektion, einem polwärts gerichtetem Transport in der oberen Stratosphäre und einem Absinken in den höheren Breiten, aufgrund der Massenerhaltung (Dameris, 2010).

Der Chapman Mechanismus allein würde die stratosphärische Ozonschichtdicke um etwa 30% überschätzen, es müssen also noch andere Abbaumechanismen existieren. Hier spielt der Ozonabbau durch katalytische Reaktionen, in denen verschiedene Radikale X die Funktion von Katalysatoren übernehmen, eine wichtige Rolle (Reaktionen 2.13- 2.15).



Als Katalysatoren X fungieren Radikale aus den Familien HO_x ($=H+OH+HO_2$), NO_x ($=NO+NO_2$), ClO_x ($=Cl+ClO+2ClOOCl$) und BrO_x ($Br+BrO$). Der Beitrag der Radikalfamilien zum Ozonabbau ist stark höhenabhängig. So ist in der unteren und mittleren Stratosphäre (15-30 km) der ClO_x -Zyklus von großer Bedeutung, während der HO_x -Zyklus unterhalb von 15 km und der NO_x -Zyklus oberhalb 30 km eine wichtige Rolle spielt. Gebremst wird die Wirkung der Radikale durch Reaktionen untereinander und durch die Bildung von Reservoirgasen, z.B. HCl und HNO_3 . Die Umwandlung in Reservoirgase setzt das Ozonzerstörungspotential zwar herab, diese können aber wieder in aktive Formen zurückgeführt werden (Dameris, 2010).

Auch im polaren Winter, wenn die Prozesse wegen der wenigen Solarstrahlung sehr langsam verlaufen, kann Ozon abgebaut werden. Hier sind es chemische Reaktionen auf der Oberfläche von polaren stratosphärischen Eisteilchen (PSC: polar stratosphere clouds), die für eine Aktivierung von Chlor verantwortlich sind (Dameris, 2010).

2.3.2 Chemische Wasserdampfproduktion in der Stratosphäre

Eine In-situ-Quelle von Wasserdampf in der Stratosphäre ist die in Reaktion 2.16 beschriebene Oxidation von Methan.

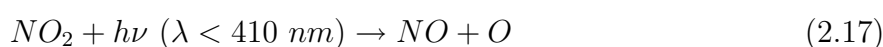


Hierbei gewinnt die chemische Wasserdampfproduktion mit zunehmender Höhe an Bedeutung. Je nach Verlauf der Methanoxidationskette können pro Methanmolekül bis zu zwei Wassermoleküle entstehen (Stenke, 2006).

2.3.3 Ozonchemie der Troposphäre

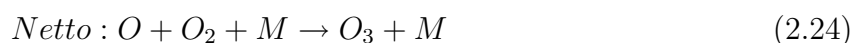
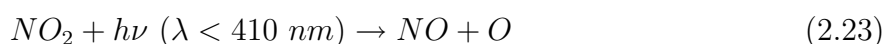
Troposphärisches Ozon trägt etwa 10% zur Ozongesamtsäule bei. Es wird nicht direkt in die Atmosphäre emittiert, sondern entsteht dort erst durch photochemische Prozesse aus Vorläufergasen, hierzu zählen die Stickoxide (NO_x), Kohlenmonoxid (CO), Methan (CH_4) und Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (NMHCs). In diesem Abschnitt werden die grundlegenden chemischen Reaktionen der troposphärischen Ozonchemie dargestellt.

Eine wichtige Reaktionskette in der Troposphäre im Zusammenhang mit Ozon ist der Stickoxidzyklus. In seiner ungestörten Form wird er durch die Reaktionen 2.17-2.19 beschrieben.



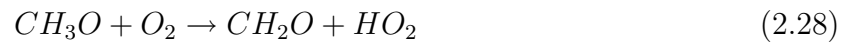
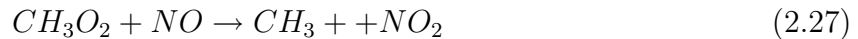
Das photostationäre Gleichgewicht zwischen NO, NO_2 und O_3 ergibt keine Nettoozonproduktion. Um Ozonänderungen in der Troposphäre zu erklären, müssen also andere Reaktionen stattfinden. Das in den Gleichungen 2.17-2.19 beschriebene photochemische Gleichgewicht kann durch CO, CH_4 und NMHCs empfindlich gestört werden. Sie greifen nicht direkt in den Ozon-Zyklus ein, sondern werden zunächst durch Oxidation abgebaut. Die dabei entstehenden Abbauprodukte fördern die Umwandlung von NO zu NO_2 . Damit steht weniger NO zum Abbau und mehr NO_2 zur Bildung von Ozon zur Verfügung und die Rückreaktion 2.19 des Ozons mit Stickstoffmonoxid wird geschwächt.

Zuerst soll hier der Oxidationszyklus für CO vorgestellt werden. Er ist nur bedeutsam wenn genügend Stickoxide vorhanden sind. Die Oxidation von CO durch OH führt zur Bildung von H_2O , was wiederum NO_2 bildet, das photolysiert wird und Ozon bildet. Zusätzlich wird ein OH-Radikal gebildet (siehe Reaktionen 2.20-2.24).



Ein anderer Mechanismus für Änderungen in der Ozonproduktion, weniger wichtig als der CO-Zyklus, ist die Oxidation von CH_4 und höherwertigen Kohlenwasserstoffen (NMHCs). Der Methanoxidationszyklus ist in den Reaktionen 2.25-2.31 wiedergegeben.





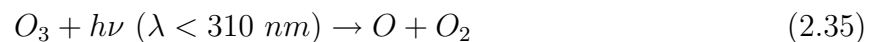
Diese Netto-Ozonproduktion in der Troposphäre wird maßgeblich durch die Hintergrundkonzentration von NO_x gesteuert. Nimmt die Ozonproduktion bei normalem NO_x -Hintergrund mit zunehmendem NO_x nahezu linear zu, kommt es bei hohem NO_x -Hintergrund, größer als 500 pptv, hingegen mit weiter zunehmenden NO_x zu einer Abnahme der Ozonproduktion. Grund ist der Verlust an HO_x bei hohen NO_x -Hintergrundkonzentrationen, hauptsächlich durch die Reaktion 2.32, die HNO_3 bildet, das ausgewaschen werden kann.



Die oben vorgestellte Ozonproduktion durch den Kohlenmonoxid- und Methanoxidationszyklus, findet allerdings erst statt wenn die NO-Konzentration in der Troposphäre einen Grenzwert von 10 bis 30 ppt (Logan, 1985) übersteigt. Im Falle von niedrigen NO-Konzentrationen, also wenn die NO-Konzentrationen Werte unter diesem Grenzwert liegen, reagiert HO_2 eher mit Ozon als mit NO, und es kommt zum Ozonabbau (siehe Reaktion 2.33). Ein weiterer Ozonverlustmechanismus ist die Reaktion von OH mit Ozon (siehe Reaktionen 2.34).



Weiterer Ozonverlust in der Troposphäre ist der photochemische Abbau von Ozon (Reaktion 2.35), bei der ein Sauerstoffatom entsteht, das im Anschluss mit H_2O reagieren kann und somit ein OH-Radikal produziert (Reaktion 2.36).



Die Oxidation von H_2O (Reaktion 2.36) stellt die wichtigste Quelle von HO_x -Radikalen in der Troposphäre dar. OH reagiert in der Troposphäre mit nahezu allen Spurengasen und bildet damit das wichtigste Oxidationsmittel (Stenke, 2006).

2.4 Klima-Chemie-Wechselwirkungen

Wie bereits in Kapitel 1 erläutert, ist in einem wärmeren Klima nicht nur eine Änderung physikalischer Prozesse, sondern auch eine Änderungen chemischer Prozesse zu erwarten.

Chemisch aktive Spurengase wie Ozon, Lachgas und Methan reagieren auf die Änderung im Klimasystem. Zu den wichtigsten Auslösern von Klima-Chemie-Rückkopplungen zählen unter anderem die Änderung von Temperatur, Wasserdampf, Niederschlag, atmosphärischem Transport und klimabedingten biogenen und durch Blitze ausgelöste Emissionen (z.B. Stevenson et al., 2005).

Eine Vielzahl chemischer Reaktionsraten in der Atmosphäre sind temperaturabhängig. Eine Zunahme von CO_2 führt z.B. zu einer Abnahme der Stratosphärentemperatur, da in dieser Schicht mehr langwellige Strahlung emittiert als absorbiert wird. Diese Abkühlung beeinflusst unter anderem die Gasphasenchemie des Ozonabbaus in der Stratosphäre (z.B. Photolyse von FCKW). Hier verlangsamen sich die wichtigsten katalytischen Ozonabbauzyklen in der mittleren und oberen Stratosphäre. Der schwächere Ozonabbau führt zu einer Zunahme der Ozonkonzentrationen (z.B. Portmann und Solomon, 2007; Haigh und Pyle, 1982; Eyring et al., 2010). Im Gegensatz dazu führt eine Abkühlung der Stratosphäre im Bereich der polaren unteren Stratosphäre zu verstärkter Bildung von PSC, woraus ein stärkerer Ozonabbau durch heterogene chemische Reaktionen resultiert. Dadurch nimmt die Ozonkonzentration im Frühjahr in der polaren unteren Stratosphäre ab (Dameris, 2010). Auch die Erwärmung der Troposphäre führt zu geänderter Produktion und Destruktion von einigen Spurengasen auf Grund der Temperaturabhängigkeit einige Reaktionsraten. Ein Beispiel für eine stark temperaturabhängige Reaktion ist die Oxidation von CH_4 (Reaktion 2.16), welche den Lebenszyklus von Methan und Ozon beeinflusst (z.B. Stevenson et al., 2005; Johnson et al., 1999). Diese Reaktion läuft in einer wärmeren Troposphäre schneller ab.

In einem wärmeren Klima nimmt der troposphärische Wasserdampfgehalt zu, da die Aufnahmefähigkeit der Atmosphäre durch die Clausius-Claperton-Gleichung stark an die Temperatur gebunden ist. Für den Wasserdampfeintrag in die Stratosphäre ist der kontrollierende Parameter die sogenannte Coldpoint-Temperatur, welche das Temperaturminimum in der vertikalen Säule bezeichnet. Sie wird im Folgenden auch mit CPT abgekürzt. Änderungen der Wasserdampfkonzentrationen sind sowohl in der Troposphäre wie in der Stratosphäre von großer Bedeutung für die Chemie, da Wasserdampf eine wichtige Vorläufersubstanz des OH-Radikals ist (siehe Reaktion 2.36). Die Zunahme von OH wird vermutlich einen starken Einfluss auf die Troposphärenchemie haben, da OH mit nahe zu allen Gasen reagiert. So ist die Oxidation von H_2O die wichtigste Senke für troposphärisches Ozon (z.B. Stenke, 2006; Stevenson et al., 2005). Auch die Abnahme in den NO_y -Konzentrationen in einem wärmeren Klima lassen sich auf eine Zunahme des OH-Radikals zurückführen: Durch die Zunahme von OH kommt es zu einer Zunahme von HNO_3 (siehe Reaktion 2.32), das dann verstärkt ausgewaschen wird, selbst bei gleichbleibendem Niederschlag (Grewe et al., 2001b). In der Stratosphäre ist die Zunahme des Wasserdampfes und die damit verbundene Bildung von OH für einen verstärkten Ozonverlust durch den katalytischen HO_x -Zyklus verantwortlich (Stenke und Grewe, 2005).

Des Weiteren reagieren chemische Spurengase sensitiv auf eine geänderte atmosphärische Zirkulation. Viele aktuelle Modellstudien zeigen, dass eine Klimaerwärmung zu einer Intensivierung der Brewer-Dobson-Zirkulation, insbesondere des Tropical-upwellings, welches das Aufsteigen von tropischen Luftmassen in der unteren Stratosphäre beschreibt, führt (z.B. Deckert und Dameris, 2008; Garcia und Randel, 2008; Garny, 2010). Garny (2010)

zeigt in ihrer Arbeit, dass der Mechanismus des verstärkten Tropical-upwellings durch eine Verstärkung des lokalen Antriebs durch großskalige Wellen erklärt werden kann. Dies hat Einfluss auf die thermische Struktur und auf die Verteilung von Spurengasen, vor allem in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre, da hier die Lebensdauer von Ozon relativ hoch ist. So kommt es zu einem stärkeren Eintrag von troposphärischen Quell- und Produktgasen in die Stratosphäre (Dameris, 2010). Die Erwärmung der Troposphäre hat eine verstärkte tropische Konvektion zur Folge, welche einen Einfluss auf die Verteilung von troposphärischen Spurengasen hat. So führt die Zunahme der Konvektion zu einer reduzierten Ozonsäule, außer in stark verschmutzten Gebieten (Stevenson et al., 2005). Die Studie von Johnson et al. (1999) zeigt außerdem in den Extratropen einen stärkeren Eintrag von stratosphärischem Ozon in die Troposphäre in einem wärmeren Klima.

Auch ein geänderter hydrologischer Zyklus, z.B. die Änderung des Niederschlags in einem wärmeren Klima, kann chemische Spurengase beeinflussen. So sind Änderungen im hydrologischen Zyklus wichtig für wasserlösliche Spurengase (z.B. HNO_3 , H_2O_2 , HCl), da sich die Auswasch- und Depositionsprozesse wichtiger chemischer Komponenten ändern (z.B. Grewe et al., 2001b; Stevenson et al., 2005). Die Studie Grewe et al. (2001b) zeigt, dass sich auch natürliche Quellen von Ozonvorläufersubstanzen, wie z.B. Stickoxidproduktion in Gewittern, in Verbindung mit dem hydrologischen Zyklus (Konvektion) verändern können.

Kapitel 3

Modellbeschreibung

Das globale Klima-Chemie-Modellsystem EMAC (**E**CHAM5/**M**ESSy **A**tmospheric **C**hemistry), das dieser Arbeit zugrunde liegt, besteht aus dem globalen Zirkulationsmodell ECHAM5 und einer Auswahl an modularen Submodellen. Von diesen ist für die vorliegende Arbeit das Chemiemodul MECCA (Sander et al., 2005) das wichtigste, da es notwendig ist, um EMAC als Klima-Chemie-Modell nutzen zu können. Dieses Kapitel beschreibt in Abschnitt 3.1 zunächst das Basismodell ECHAM5 und geht dann auf das EMAC-Modellsystem mit den in dieser Arbeit verwendeten Submodellen ein (Abschnitt 3.2). Eine genaue Beschreibung des Chemiemoduls und der verwendeten Emissionsdaten erfolgt in den Abschnitten 3.3 und 3.4. Der im Rahmen dieser Arbeit an EMAC gekoppelte Deckschichtozean wird in Abschnitt 3.5 vorgestellt. Zum Schluss dieses Kapitels werden die zusätzlichen Diagnostiken beschrieben, die im Rahmen meiner Arbeit in EMAC eingebaut wurden. Zu dieser zählt die bisher nur im Vorgängermodell ECHAM4 nutzbare Berechnung des Strahlungsantriebs nach Stuber et al. (2001).

3.1 Globales Zirkulationsmodell ECHAM5

Das globale Zirkulationsmodell ECHAM (Roeckner et al., 1992, 1996) basiert auf dem Wettervorhersagemodell des European Centre for Medium Range Weather Forecast (ECMWF). Um es für Klimasimulationen einsetzen zu können, wurden vom Max-Planck-Institut für Meteorologie in Zusammenarbeit mit dem Meteorologischen Institut der Universität Hamburg und dem Deutschen Klimarechenzentrum (DKRZ) zahlreiche Anpassungen vorgenommen, vor allem bezüglich der Parametrisierungen. Mit ECHAM5 liegt die fünfte Generation dieses Klimamodells vor. Eine detaillierte Beschreibung von ECHAM5 ist in Roeckner et al. (2003) zu finden.

Das globale dreidimensionale Zirkulationsmodell löst die grundlegenden, sogenannten primitiven Gleichungen der atmosphärischen Dynamik und Thermodynamik (horizontale Bewegungsgleichung, thermodynamische Wärmeleichung, Kontinuitätsgleichung und hydrostatische Approximation). Die prognostischen Variablen sind Temperatur, Vorticity, horizontale Divergenz des Windfeldes, Logarithmus des Bodendrucks, spezifische Feuchte sowie

Wolkenwasser in flüssiger und fester Phase. Auch passive Spurenstoffe (Gase oder Aerosole), sogenannte Tracer, können transportiert und prognostiziert werden. Der in ECHAM5 zur Verfügung stehende Transportalgorithmus geht auf Lin und Rood (1996) zurück. Da ECHAM ein spektrales Modell ist, werden alle prognostischen Variablen, ausgenommen Wasserdampf und Wolkenwasser, nach spektraler Transformation als Reihen von Kugelflächenfunktionen dargestellt. Die Anzahl der berücksichtigten Kugelflächenfunktionskoeffizienten bestimmt die spektrale Auflösung des Modells. Für ECHAM5 sind folgende spektrale Auflösungen alternativ verfügbar: T21, T31, T42, T63, T85, T106 und T156. In dieser Arbeit wird eine horizontale Auflösung von T42 verwendet, was in etwa isotropen 4.3° entspricht. Nichtlineare Terme und ein Großteil der Parametrisierungen werden nach der Transformation in den Gitterpunktraum auf einem Gaußschen Gitter berechnet, dieses besitzt eine Auflösung von ungefähr $2.8^\circ \times 2.8^\circ$.

Als Zeitschema wird ein semi-implizites Leap-Frog-Verfahren verwendet. Ein Zeitfilter verhindert des weiteren, dass sich die Lösungen der beiden Zeitebenen voneinander entfernen (Asselin, 1972). Aus Gründen der numerischen Stabilität der Lösung kann der Zeitschritt Δt nicht beliebig groß gewählt werden, da das Courant-Friedrich-Levy-Kriterium (CFL) annähernd erfüllt sein muss ($\Delta t \leq \Delta x/c$). Hier ist c die maximale zu erwartende Phasengeschwindigkeit und Δx der Gitterpunktabstand. Je höher die Auflösung desto kleiner muss der Zeitschritt sein. Für die zeitliche Integration der Gleichungen beträgt er bei der T42 Auflösung 15 Minuten. Die Strahlungsparametrisierung wird jedoch aus Gründen der Rechenökonomie nur alle zwei Stunden berechnet.

Die Vertikalstruktur des Modells wird durch ein hybrides σ - p -Koordinatensystem gebildet. Am Boden werden reine σ -Koordinaten verwendet ($\sigma = p/p_{Boden}$), die der Orographie folgen. Dadurch wird sichergestellt, dass die Isolinien der Vertikalkoordinate den unteren Rand der Modelldomäne nicht schneiden. Anschließend werden hybride Koordinaten verwendet und schließlich, oberhalb von 35 hPa, reine Druckkoordinaten (p -Koordinaten). Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine vertikale Auflösung von 41 Schichten verwendet. Die oberste Modellschicht ist um 5 hPa zentriert. Bei dieser Auflösung ist die untere und mittlere Stratosphäre hinreichend gut, die obere Stratosphäre jedoch nicht vollständig aufgelöst.

Die grobe horizontale und vertikale Diskretisierung führt dazu, dass kleinskaligen Vorgänge in der Atmosphäre nicht direkt aufgelöst werden können. Derartige kleinskalige Prozesse sind jedoch notwendig, um die Dynamik der Atmosphäre richtig zu simulieren. Darum müssen einige physikalische Prozesse durch vorhandene großskalige Modellvariablen beschrieben werden. Dieser Vorgang wird als Parametrisierung bezeichnet. Konvektiver und diffusiver Transport sowie Wolken sind Beispiele für parametrisierte Prozesse.

3.2 Klima-Chemie-Modellsystem EMAC

Das Klima-Chemie-Modell EMAC ist ein Modellsystem mit Submodellen, das die Prozesse der Troposphäre und der mittleren Atmosphäre, einschließlich ihrer Interaktion mit Ozeanen und Land, sowie dem Einfluss des Menschen beschreibt (Jöckel et al., 2006). EMAC

basiert auf der 1. Version des Modular Earth Submodel System (MESSy1). Es koppelt durch seine modulare Struktur Chemie und Dynamik bezogene Submodelle, die in verschiedenen Instituten entwickelt wurden, an ein Basismodell. Das Basismodell ist das oben beschriebene globale Zirkulationsmodell ECHAM5. In dieser Arbeit wird die Version MESSy 1.8 verwendet, diese beinhaltet 32 Prozess- und Diagnosesubmodelle, die je nach Modellsetup ausgewählt werden können.

Wie in Abbildung 3.1 zu sehen, ist das MESSy-Interface in vier Schichten organisiert. Diese werden im Folgenden vorgestellt (Jöckel et al., 2005).

- Der **Base-Model-Layer** (BML) beinhaltet im Wesentlichen den dynamischen Kern des globalen Zirkulationsmodells ECHAM5. Dagegen wurden wichtige Teile von ECHAM5, vor allem physikalische Parametrisierungen, als Submodelle modularisiert und vom Basismodell getrennt. Hierzu zählen CLOUD, CONVECT und RAD4ALL (siehe Tabelle 3.1). Ziel ist es ECHAM5 weiter zu modularisieren, so dass das BML nur noch Zeitintegrationsmanagement und eine Kontrolle des Laufs über die einbezogenen Prozesse beinhaltet.
- Der **Base-Model-Interface-Layer** (BMIL) regelt den Austausch von Daten sowohl zwischen den Submodellen und dem Basismodell als auch zwischen den einzelnen Submodellen. Außerdem regelt das BMIL die Ausgabe (Export) und das Einlesen (Import) von Daten, z.B. die Randbedingungen des Modells.
- Der **Submodel-Interface-Layer** (SMIL) ist eine auf das Submodell bezogene Schnittstelle, welche relevante Informationen aus dem BMIL sammelt und sie an das Submodel-Core-Layer (siehe nächster Punkt) weitergibt. Hier werden die individuellen Submodelle aufgerufen und die in den Submodellen berechneten Größen werden zurück zum BMIL transferiert.
- Der **Submodel-Core-Layer** (SMCL) ist ein eigenständiger Programmkernel eines Submodells, das unabhängig von Basismodell verwendet werden kann.

Die modulare Struktur von EMAC erlaubt, durch die Möglichkeit Submodellen zu kombinieren, Anwendungen für eine große Vielfalt von wissenschaftlichen Aufgaben. Das Modellsystem kann in einer breiten Vielfalt verschiedener Konfigurationen verwendet werden, insbesondere bezüglich der Beschreibung und Komplexität des atmosphären-chemischen Mechanismus MECCA (siehe Abschnitt 3.3). Es kann als Allgemeines Atmosphärenzirkulationsmodell ohne oder mit Einbindung chemischer Prozesse dienen. Durch die explizite Auswahl der Submodelle CLOUD, CONVECT und RAD4ALL kann es als rein dynamisch-physikalisches Modell verwendet werden, das identische Ergebnisse zum nicht modularisierten ECHAM5-Modell liefert. Unter Einbindung des Chemiemoduls MECCA und weiterer Submodule kann es auch als Klima-Chemie-Modell genutzt werden. Rückkopplungen zwischen Atmosphärenchemie und Dynamik sind durch das Strahlungsmodul RAD4ALL möglich (interaktives Klima-Chemie-Modell). Die Verteilung der strahlungsaktiven Gase Ozon, Wasserdampf, Methan, Lachgas und FCKW, die im Chemiemodul MECCA simuliert

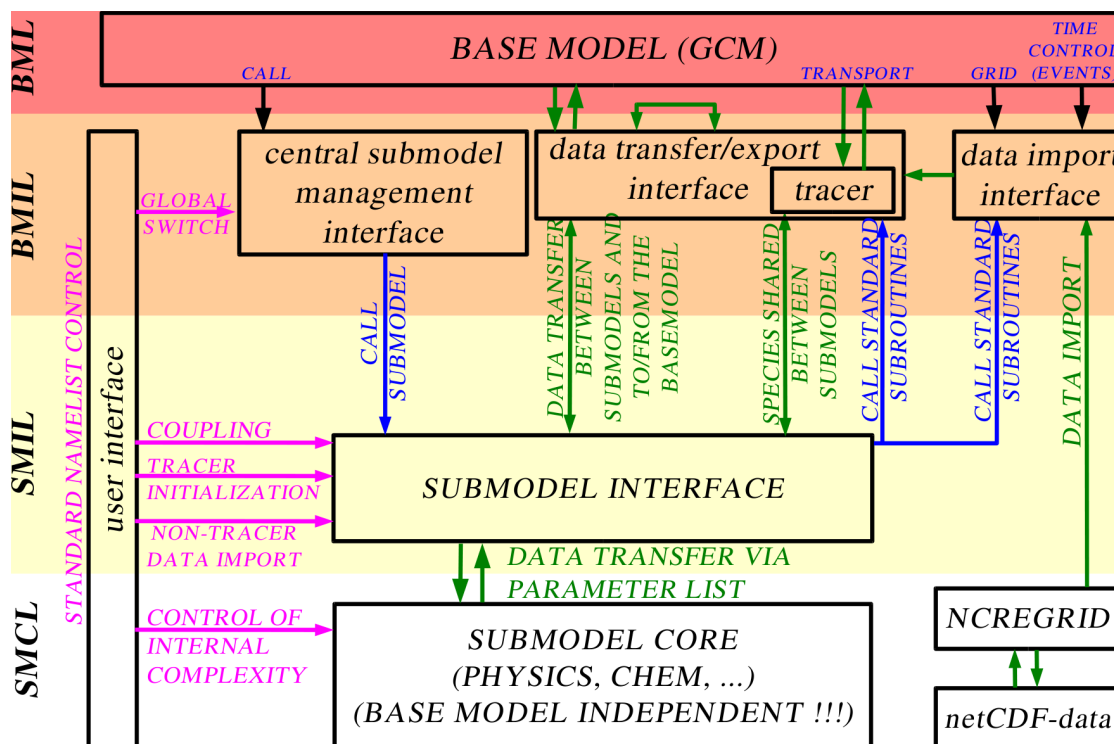


Abbildung 3.1: Die vier Schichten des MESSy-Interface (Jöckel et al., 2005). Eine detaillierte Beschreibung ist im Text zu finden.

werden, werden in diesem Fall an das Strahlungsmodul weitergegeben und beeinflussen somit den Strahlungshaushalt der Atmosphäre, was zu einer Rückkopplung auf die Dynamik führt (Jöckel et al., 2006). Die Anwendung von EMAC in dieser Arbeit stellt ein solches interaktives Klima-Chemie-Modell dar und verwendet die in Tabelle 3.1 zusammengefassten Submodelle. Eine genaue Beschreibung der jeweiligen Submodelle ist auf der MESSy Webseite (www.messy-interface.org) zu finden.

An dieser Stelle soll dennoch kurz auf die Submodelle RAD4ALL und CLOUD eingegangen werden. In das Submodell RAD4ALL ist der originale ECHAM5-Strahlungscode MESSy-konform implementiert. Das Strahlungstransportschema von ECHAM5 geht auf Fouquart und Bonnel (1980) und Mlawer et al. (1997) zurück und hat 4 Bänder, die das solare Spektrum, und 16 Bänder die das langwellige Spektrum abdecken. Im Rahmen dieser Arbeit wurde zusätzlich die Online-Berechnung des Strahlungsantriebs nach Stuber (Stuber et al., 2001) in RAD4ALL eingebaut (siehe Abschnitt 3.6). Auch das Submodell CLOUD enthält die Original-ECHAM5-Routinen in modularisierter, MESSy-konformer Struktur. Hier werden Wolkenbedeckung sowie Wolkenmikrophysik einschließlich Niederschlag berechnet. Das Standard ECHAM5-Tompkins-Wolken-Schema (Tompkins, 2002) wird im Rahmen dieser Arbeit jedoch durch das Sundquist-Wolkenschema (Sundquist, 1978; Sundquist et al., 1989) ersetzt. Das Tompkins-Schema beschreibt die Prozesse der Wolkenphysik zwar in detaillierterer und physikalisch anspruchsvollere Weise, aber es verursacht eine starke Nichtlinearität in der Modellresponse, vor allem bei starken Abweichungen vom Referenzklima. So ist

Tabelle 3.1: Tabelle zeigt die in dieser Arbeit verwendeten Submodelle. Nicht in der Standard Version 1.8 enthalten sind das Submodell TTDIAG und Zusatzdiagnostiken im Submodell RAD4ALL (eigene Entwicklung).

Submodell	Funktion	Referenz
CLOUD	Sundquist Wolkschema	Sundquist (1978), Sundquist et al. (1989)
CONVECT	Original ECHAM5 Konvektions- schema	Tiedtke (1989), Nordeng (1994)
CVTRANS	Tracertransport durch Konvek- tion	Tost et al. (2006)
DRYDEP	Trockene Deposition von Gaspha- se und Aerosol	Kerkweg et al. (2006a)
HETCHEM	Heterogene Reaktionsraten an stratosphärischem und tropo- sphärischem Aerosol	-
H2O	Initialisierung von H ₂ O in Stra- tosphäre und Rückkopplung mit spezifischer Feuchte, Berechnung der Methanoxidation	Lelieveld et al. (2007)
JVAL	Berechnung der Photolyseraten- koeffizienten	Landgraf und Crutzen (1998)
LNOX	Produktion von Blitz-NO _x	Grewe et al. (2001a)
MECCA1	Troposphärische und strato- sphärische Atmosphärenchemie	Sander et al. (2005)
OFFLEM	Offline Emissionen	Kerkweg et al. (2006b)
ONLEM	Online Emissionen	Kerkweg et al. (2006b)
PSC	Bildung und Sedimentation von polaren stratosphärischen Wolken	Buchholz (2005)
RAD4ALL	Original ECHAM5-Strahlungs- schema, ergänzt durch eigene Diagnostik	Roeckner et al. (2003)
SCAV	Feuchte Deposition von Gasphase und Aerosol aufgrund von Nieder- schlägen	Tost et al. (2006)
TROPOP	Berechnung von Tropopausenpa- rametern, z.B. Tropopausenhöhe	-
TTDIAG	weitere Tropopausendiagnostik	eigene Entwicklung
TNUDGE	Tracernudging	Kerkweg et al. (2006b)
QBO	Assimilation von QBO Zonalwind aus Beobachtungen	Giorgetta und Bengtsson (1999)

für Klimasensitivitätssimulationen ECHAM5 mit Sundquist-Wolkenschema zu bevorzugen (Ponater, 2009). Diese Konfiguration von ECHAM5 wurde auch im Rahmen von Klimaänderungssimulationen für den letzten IPCC-Bericht verwendet (Roeckner, pers. Mitt.).

3.3 Chemiemodul MECCA

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Studien wurde das Chemiesubmodell MECCA (**M**odule **E**fficiently **C**alculating the **C**hemistry of the **A**tmosphere, Sander et al. (2005)) verwendet. Es wurde am Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz entwickelt und wird über MESSy an das globale Zirkulationsmodell ECHAM5 gekoppelt. MECCA umfasst einen umfangreichen Satz von atmosphärischen Spurenstoffen und Reaktionsraten der Gasphasenchemie sowohl für die Troposphäre als auch für die Stratosphäre. Standardmäßig sind Reaktionen für die O₃-, CH₄-, CO-, NO_x- und HO_x-Chemie in der Troposphäre vorhanden. Des Weiteren beinhaltet MECCA eine detaillierte Nicht-Methan-Kohlenwasserstoff-, Halogen- und Sulfat-Chemie in der Troposphäre (Sander et al., 2005). Die Stratosphärenchemie basiert auf den Arbeiten von Steil et al. (1998) und beinhaltet zusätzlich Reaktionen der Bromchemie (Meilinger, 2000). Neben der Gasphasenchemie werden heterogene Reaktionen an Sulfataerosolen und an polaren stratosphärischen Wolken berechnet (Submodell PSC, Buchholz (2005)), sowie die Reaktionen der Flüssigphasenchemie, welche das Auswaschen von Spurengasen und Aerosolpartikel durch Wolken und Niederschlag beschreiben (Submodell SCAV, Tost et al. (2006)). Je nach wissenschaftlicher Aufgabenstellung kann die Komplexität des MECCA Chemie Mechanismus vom Nutzer gewählt werden. Die numerische Flexibilität von MECCA ist durch den kinetischen Präprozessor KPP (kinetic preprocessor) gewährleistet (Sandu und Sander, 2006). KPP ist ein numerischer Integrator, der für die Integration des differentiellen chemischen Gleichungssystems verantwortlich ist. Je nachdem, ob Stabilität, Effizienz oder Genauigkeit für die Anwendung gewünscht ist, können unterschiedliche Versionen des numerischen Integrator KPP gewählt werden (Sander et al., 2005). Der als Standard empfohlene Integrator ist der Rosenbrock-Solver mit adaptivem Zeitschritt (ros3). Dieser ist sehr robust und löst auch sehr steife Gleichungssysteme (z.B. chemische Gleichungssysteme, die sowohl Gasphasen- als auch Flüssigphasenchemie enthalten). Im Gegensatz dazu ist der Rosenbrock-Solver mit fester Zeitschrittkontrolle (ros2) nur für weniger steife Gleichungssysteme (z.B. reine Gasphasenchemie) geeignet, er hat aber den Vorteil, dass die Berechnung sehr schnell ist (Sander et al., 2005).

Abhängig von der Komplexität des Chemie-Setups benötigt die Berechnung chemischer Reaktionen einen großen Teil der Rechenleistung. Für lange, rechenzeitintensive Klima-Chemie-Simulationen mit interaktivem Ozean, wie sie in der vorliegenden Arbeit durchgeführt werden, ist darum eine vereinfachte Chemiekonfiguration von MECCA nötig, um ein ressourcenfreundliches Modellsystem zur Verfügung zu haben. Der in dieser Arbeit ausgewählte Chemie-Mechanismus umfasst eine homogene und heterogene Stratosphärenchemie ohne Brom sowie eine Troposphärenchemie ohne Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe, ohne Chlor, ohne Brom, ohne Sulfat und ohne Iodid. Diese Konfiguration entspricht in etwa der Komplexität des Chemiemoduls CHEM (Steil et al., 1998), das als Teil des interaktiven Klima-Chemie-Modells ECHAM4/CHEM eingesetzt wurde (Hein et al., 2001; Dameris

et al., 2005). Des Weiteren wurden, wiederum aus Gründen der Rechenzeitökonomie, im Scaveningmodul SCAV feste Auswaschkoeffizienten verwendet, das heißt es wird keine numerische Integration dieser Gleichungen mittels KPP durchgeführt. Um die Rechenzeit eines Modelljahres weiter zu reduzieren wurde auch die Eignung des KPP-Solver `ros2-log10` getestet. Es zeigte sich, dass für Klimagleichgewichtssimulationen mit mäßig starker Störung die Simulationsergebnisse mit `ros3` und `ros2-log10` sich nicht signifikant voneinander unterscheiden. Hingegen kommt es bei hohen Störungen, wie zum Beispiel bei einer 9-fachen Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen oder in Erhöhungsexperimenten mit 4-fachen oder 6-fachen CO_2 -Konzentrationen zu numerischen Abstürzen im Modellsystem. Für diese Simulationen kann der `ros2-log10` Solver also nicht mehr angewendet werden, wodurch die Rechenzeit erheblich zunimmt. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Simulationen mit der hier vorgestellte Konfiguration des Modellsystems EMAC wurden auf dem DKRZ-Hochleistungsrechner 'blizzard', einer IBM Power6 durchgeführt. Wählt man den KPP-Solver `ros3` benötigt man $4.72 \cdot 10^3$ CPU-Stunden pro simuliertem Jahr bei Verwendung von 128 CPUs.

3.4 Beschreibung der Emissionsdaten

Emissionen und Randbedingungen in EMAC werden durch die Submodelle ONLEM (Online Emission), OFFLEM (Offline Emission) und TNUDGE (Tracer Nudging) gesteuert. Das Submodell OFFLEM ist für das Einlesen von externen Emissionsfeldern ins Modell verantwortlich. Das Submodell ONLEM berechnet die Emissionen im Modell, z.B. in Abhängigkeit von der Meteorologie. Des Weiteren gibt es das Submodell TNUDGE, welches die untere Randbedingung von einigen langlebigen Spurengasen (z.B. CH_4 , N_2O) durch beobachtete Mischungsverhältnisse vorschreibt (Kerkweg et al., 2006b).

In dieser Arbeit werden die chemischen Substanzen NO , CO , CH_3OH , HCHO , HCOOH und SO_2 als Emissionen in OFFLEM berücksichtigt. Diese Emissionen stammen aus der EDGAR3.2FT2000-Datenbank, die einen Datensatz für globale jährliche Emissionen für das Jahr 2000 für die Treibhausgase CO_2 , CH_4 und N_2O und für die Vorläufersubstanzen CO , NO_x , NMHCs und SO_2 liefert. Emissionen aus Verkehr, Industrie und Biomassenverbrennung werden berücksichtigt. Eine genaue Beschreibung von EDGAR3.2FT2000 ist in Ganzeveld et al. (2006) zu finden. Die Emissionen des Flugverkehrs stammen aus dem AERO2K-Kataster für das Jahr 2002 (Eyers et al., 2004). Dieser umfasst Emissionen der Gase NO_x , H_2O , CO_2 , CO und HC .

Mit Hilfe des Submodells ONLEM werden NO -Emissionen über Landoberflächen während der Simulation in Abhängigkeit von Bodentemperatur und Bodenfeuchte berechnet (Kerkweg et al., 2006a). Zusätzlich werden die unteren Randbedingungen für die Spurengase N_2O , CH_4 , FCKWs, H_2 , CO_2 und SF_6 im Submodell TNUDGE vorgeschrieben. Sie stammen aus beobachteten Mischungsverhältnissen aus der AGAGE- (Advanced Global Atmospheric Gases Experiment) Datenbank (Prinn et al., 2001).

Das Submodell LNOX (Lightning Nitrogen Oxide Emission) kalkuliert die Blitzfrequenz und die daraus resultierenden Emissionen von Stickoxiden in Gewittern. Hier wird die Parametrisierung von Grewe et al. (2001a) verwendet, bei der die Stickoxidproduktion eine Funktion der Konvektionsstärke und -häufigkeit ist und damit unter Klimaänderungen veränderlich ist.

3.5 Modellkonfiguration EMAC/MLO

Für Klimagleichgewichtsexperimente, welche ein neues stationäres Gleichgewicht des Klimas in Folge einer Störung der Strahlungsbilanz berechnen, ist ein reines Atmosphärenmodell mit vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen nicht ausreichend. Hier wäre der Temperaturresponse gedämpft, da die vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen keine Rückkopplung über dem Ozean erlauben (z.B. Ponater et al., 1999). Da ein Modellsystem mit tiefem Ozean, d.h. mit interaktiv simulierter Meeresströmung, aufgrund der langen Responszeiten zu aufwendig ist, entscheidet man sich bei Klimagleichgewichtsexperimenten für eine Modellkonfiguration mit gekoppeltem Deckschichtozean (z.B. Mitchell et al., 2001). Die Ankopplung eines Deckschichtozeans MLO (Mixed Layer Ocean) an EMAC ist im Rahmen dieser Arbeit technisch vollzogen und erfolgreich getestet worden. Der Deckschichtozean ist damit in das modulare Erdsystemmodell MESSy integriert und Anwendungen mit der Modellkonfiguration EMAC/MLO sind nun möglich.

Das Deckschichtozeanmodell MLO (Roeckner et al., 1995) besteht aus einem 50 m tiefen thermodynamischen Deckschicht- und einem thermodynamischen Meereismodell. Der vertikale und horizontale Wärmeaustausch mit dem tiefen Ozean wird hier durch einen vorgeschriebenen klimatologischen jährlichen Zyklus repräsentiert (Ponater et al., 1999), es wirken also keine horizontalen oder vertikalen Strömungen, nur die Strahlungsflüsse und der Austausch von sensibler und latenter Wärme zwischen Ozean und Atmosphäre werden beschrieben. Das thermodynamische Meereismodell berechnet die Meereisdicke und seine Oberflächentemperatur über die Energiebilanz am Ober- und Unterrand der Eisschicht (Ponater et al., 1999).

3.6 Zusätzliche Diagnosetools

In das EMAC-Strahlungsmodul RAD4ALL wurde die Online-Berechnung des stratosphären-adjustierten Strahlungsantrieb an einer fixen Tropopause implementiert und getestet. Dies ist das Standardverfahren für die Berechnung von Strahlungsantrieben (z.B. Hansen et al., 1997) und insbesondere für die sinnvolle Interpretation von Antrieb und Response im Falle von Ozonstörungen unverzichtbar. Die technische Umsetzung in ECHAM4 geht auf die Arbeit von Stuber et al. (2001) zurück und berechnet den stratosphären-adjustierten Strahlungsantrieb während der Modellintegration. Hierzu wird ein zweites prognostisches Temperaturfeld eingeführt, welches in der Stratosphäre durch Strahlungsprozesse auf die vorgeschriebene Störung reagiert ('fixed dynamical heating concept', siehe Abschnitt 2.1.1). Es

ist hilfreich sich unter dem gestörten Temperaturfeld eine zweite Atmosphäre vorzustellen (Stuber et al., 2001). Die ungestörte Referenzatmosphäre hingegen bleibt von der Störung unbeeinflusst. Für beide Atmosphären werden dann die Strahlungserwärmungsraten berechnet. Die Differenz der ihrer Strahlungsbilanzen ergibt dann den stratosphären-adjustierten Strahlungsantrieb. Eine nähere Beschreibung dieser Methode ist in Stuber et al. (2001) zu finden. Neben der Berechnung des Strahlungsantriebs einer Konzentrationsänderung mit konstanten Mischungsverhältnissen ist es auch möglich den Strahlungsantrieb eines dreidimensionalen Störungsfeldes zu bestimmen, hier kann auch zwischen einer Störung in der Stratosphäre und in der Troposphäre unterschieden werden (Stuber et al., 2005). Außerdem kann auch der instantane Strahlungsantrieb berechnet werden, bei dem die stratosphärische Temperaturanpassung nicht verwendet wird.

Des Weiteren wurde im Rahmen dieser Arbeit das Submodell TTDIAG zur Berechnung wichtiger Tropopausendiagnosegrößen entwickelt. Hier werden Höhe, Temperatur und Wasserdampfmischungsverhältnis an der thermischen Tropopause sowie Druck, Höhe, Temperatur und Wasserdampfmischungsverhältnis in der kältesten Schicht innerhalb der Säule (Coldpoint) berechnet. Auch die Ozonkonzentrationen an der Tropopause wird diagnostiziert. In das Submodell RAD4ALL und CLOUD habe ich zusätzliche Wolkendiagnostiken eingeführt. Hierzu zählen die relative Feuchte über Eis und Flüssigwasser, die optische Dicke im Sichtbaren und die effektive Emissivität, die die Strahlungswirksamkeit der Wolken im Langwelligen beschreibt.

Kapitel 4

Durchgeführte Klimagleichgewichtssimulationen

Dieses Kapitel gibt einen Überblick (siehe auch Tabelle 4.1) über die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Klimagleichgewichtssimulationen mit und ohne interaktive Chemie. Es werden die Referenzexperimente (Abschnitt 4.1) und die Sensitivitätsexperimente vorgestellt, die sich zum einen aus CO₂-Erhöhungsexperimenten (Abschnitt 4.2) und zum anderen aus NO_x- und CO-angetriebenen Erhöhungsexperimenten (Abschnitt 4.3) zusammensetzen.

4.1 Referenzexperimente

Die Referenzexperimente (Tabelle 4.1) basieren auf der in Kapitel 3 beschriebenen Modellkonfiguration. Emissionen und Randbedingungen sind typisch für das Jahr 2000 (siehe Abschnitt 3.4).

Das erste Referenzexperiment (REF_{SST,uncoup}) ist eine Simulation ohne interaktive Chemie und mit vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen SST (Sea Surface Temperature), wobei hier die klimatologische SST aus dem Atmospheric Model Intercomparison Project (AMIP II) verwendet wurde. Dieser Datensatz umfasste ursprünglich die Jahre 1979 bis 1995 (Taylor et al., 2000) und wurde später bis zum Jahr 1999 verlängert. Durch die vorgeschriebene SST kann die Meeresoberfläche auf Strahlungsantriebe und Strahlungsrückkopplungen in der Atmosphäre nicht reagieren. Dieses Experiment dient zur Erstellung der Flusskorrektur für das weiter unten beschriebene Referenzexperiment mit gekoppeltem Ozean und ohne interaktive Chemie (REF_{MLO,uncoup}). Die Flusskorrektur erzwingt in der Referenzsimulation mit gekoppeltem Deckschichtozean die weitgehende Reproduktion der AMIP-Meeresoberflächentemperaturen.

Das zweite Referenzexperiment mit vorgeschriebener klimatologischer SST, aber mit gekoppelter Chemie (REF_{SST,coup}), dient in analoger Weise der Erstellung der Flusskorrektur (Ponater et al., 1999) für die Simulation mit gekoppeltem Ozean und interaktiver Chemie

Tabelle 4.1: Zusammenstellung aller für diese Arbeit durchgeführten Referenz- und Sensitivitätsexperimente mit dem Modellsystem EMAC. Dargestellt sind die variierten Parameter (Ozean, Chemie, CO₂-Konzentration sowie NO_x- und CO-Emissionen) und der Strahlungsantrieb RF der zugrundeliegenden Störungen. Die anthropogenen Emissionen von NO_x und CO stammen aus der EDGAR-Datenbank (siehe Kapitel 3).

Simulation	Chemie	Ozean	CO ₂	NO _x	CO	RF
			Konz. [ppmv]	Emission anthropogen [Tg/yr]	Emission anthropogen [TG/yr]	Emission [Wm ⁻²]
REF _{SST,uncoup}	nein	SST	367	43.1	470.1	-
REF _{SST,coup}	ja	SST	367	43.1	470.1	-
REF _{MLO,uncoup}	nein	MLO	367	43.1	470.1	-
REF _{MLO,coup}	ja	MLO	367	43.1	470.1	-
442CO2 _{MLO,uncoup}	nein	MLO	442	43.1	470.1	1.065
442CO2 _{MLO,coup}	ja	MLO	442	43.1	470.1	1.065
2*CO2 _{MLO,uncoup}	nein	MLO	734	43.1	470.1	4.13
2*CO2 _{MLO,coup}	ja	MLO	734	43.1	470.1	4.13
4*CO2 _{MLO,uncoup}	nein	MLO	1468	43.1	470.1	8.93
4*CO2 _{MLO,coup}	ja	MLO	1468	43.1	470.1	8.93
6*CO2 _{MLO,uncoup}	nein	MLO	2202	43.1	470.1	12.17
6*CO2 _{MLO,coup}	ja	MLO	2202	43.1	470.1	12.17
NOX/CO _{SST,coup}	ja	SST	367	387.9	4230.9	1.22
NOX/CO _{MLO,coup}	ja	MLO	367	387.9	4230.9	1.22
NOX/CO _{MLO,uncoup}	nein	MLO	367	387.9	4230.9	1.22

(REF_{MLO,coup}). Hier erzeugt das Chemiemodul MECCA eine eigene simulierte Klimatologie der strahlungsaktiven Spurengasen (O₃, CH₄ und N₂O), die dann dem Strahlungsmodul zur Verfügung stehen. MECCA ersetzt somit die standardmäßig verwendete Ozonklimatologie nach Fortuin und Kelder (1998) und die konstanten Mischungsverhältnisse von CH₄ und N₂O für das Jahr 2000.

Neben den zwei Experimenten mit vorgeschriebener SST gibt es zwei Referenzexperimente mit gekoppeltem Ozean. Hierzu zählt das an den Ozean gekoppelte Referenzexperiment ohne interaktive Chemie (REF_{MLO,uncoup}). In dieser Simulation liefern die klimatologischen Felder der strahlungsaktiven Gase Ozon, Methan und Lachgas, die im SST Experiment (REF_{SST,coup}) mit gekoppelter Chemie simuliert wurden, den Input für das Strahlungsmodul, anstelle der vorgeschriebenen Klimatologien. Das zweite Referenzexperiment mit gekoppeltem Deckschichtozean rechnet mit interaktiver Chemie (REF_{MLO,coup}).

In Jöckel et al. (2006) wird die mit dem Klima-Chemie-Modell EMAC durchgeführte EVAL-Simulation beschrieben und mit Satelliten-Daten und In-situ-Daten verglichen. Bei dieser Simulation handelt es sich um eine EMAC-Konfiguration mit einer Auflösung von T42L90, die eine an ECWMF-Daten relaxierte (genudgde) Meteorologie beinhaltet, d.h. die Mo-

dellgrößen werden durch einen Korrekturterm in Richtung beobachteter Werte gedrängt.¹ Des Weiteren wird mit dem vollständigen MECCA-Chemiemechanismus gerechnet. Es wird gezeigt, dass die EVAL-Simulation die beobachtete dynamische und chemische Beschaffenheit der Atmosphäre vom Boden bis zur Mesosphäre konsistent reproduziert (Jöckel et al., 2006). In meiner Modellkonfiguration wird eine weniger komplexe MECCA-Chemie verwendet, als in der oben erwähnten EVAL-Simulation. Sie entspricht in etwa der Komplexität des Vorgänger-Klima-Chemie-Modells ECHAM4L39(DLR)/CHEM (Steil et al., 1998; Hein et al., 2001), das z.B. in der Studie von Dameris et al. (2005) über Klima-Chemie-Wechselwirkungen erfolgreich angewendet wurde. Dieses Modell, welches ähnlich zu dieser Chemiekonfiguration auch eine Stratosphäre ohne Bromchemie und eine Troposphärenchemie ohne NMHCs abbildet, wurde in Hein et al. (2001) mit zahlreichen Beobachtungen verglichen mit der Schlussfolgerung, dass das Modell eine vernünftige Beschreibung von Dynamik und Chemie sowohl für die Troposphäre als auch für die untere Stratosphäre liefert. Vor allem das in der vorliegenden Arbeit wichtige rückkoppelnde Spurengas Ozon, wird in seiner mittleren Verteilung und in seiner Variabilität von diesem Modell gut erfasst, wobei jedoch das Ozonloch unterschätzt wird. In Simulationen mit dem Klima-Chemie-Modell EMAC/MLO erhält man eine ähnliche Verteilung des Spurengases Ozon in der Troposphäre und Stratosphäre wie in ECHAM4L39(DLR)/CHEM, hier wird das Ozonloch jedoch noch stärker unterschätzt (ein generelles Problem in freilaufenden EMAC-Simulationen). Dies ist aber für die in dieser Arbeit untersuchten Strahlungsrückkopplungen nicht entscheidend.

4.2 Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten CO₂-Konzentrationen

Bei den im Rahmen meiner Arbeit durchgeführten Sensitivitätsexperimenten mit EMAC/MLO handelt es sich um lange Klimagleichgewichtssimulationen. Ihre Einschwingphase beträgt 15-20 Jahre und der simulierte Gleichgewichtszustand 30 Jahre (siehe z.B. Abbildung 8.1). Dieser Abschnitt beschreibt das Konzept an dem besonders einfachen Beispiel von Sensitivitätsexperimenten mit erhöhten CO₂-Konzentrationen.

Abbildung 4.1 stellt die Wirkungskette eines CO₂-Erhöhungsexperimentes mit interaktiver Chemie schematisch dar. Erhöhte CO₂-Konzentrationen induzieren einen Strahlungsantrieb, der zu einer Änderung der physikalischen Klimavariablen führt. So ändern sich unter anderem Temperatur, Feuchte, Niederschlag und Bewölkung signifikant. Während die Änderung der CO₂-Konzentration (wegen des chemisch inerten Charakters von CO₂) nicht direkt in die Atmosphärenchemie eingreift, bewirkt die Änderung der Klimaparameter eine veränderte Verteilung der strahlungsaktiven, rückkoppelnden Gase (siehe Abschnitt 2.4). Die Änderung in den strahlungsaktiven Gasen, und die daraus resultierende geänderte Strahlungsbilanz (Δ RF) führt zu einer weiteren Änderung der physikalischen Klimaparameter. Somit können im interaktiv gekoppeltem Klima-Chemie-Modell neben den physikalischen

¹Der Begriff 'nudging' wurde von Weldron et al. (1996) eingeführt, die dieses Relaxationsverfahren für regionale Modellierung eingestetzt haben.

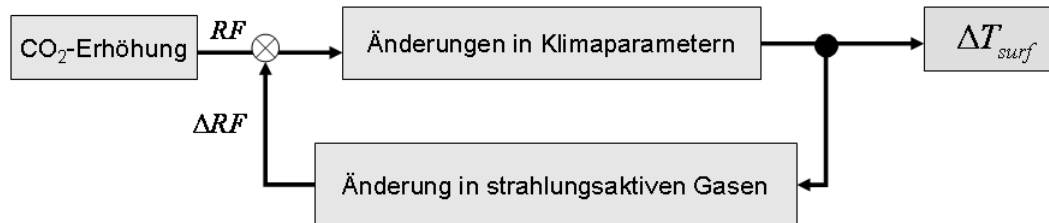


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Wirkungskette einer Klimagleichgewichtssimulation mit interaktiver Chemie, angetrieben durch eine Erhöhung der CO_2 -Konzentrationen. Eine nähere Beschreibung befindet sich im Text.

Strahlungsrückkopplungen zusätzlich die Strahlungsrückkopplungen über die Atmosphärenchemie berücksichtigt werden und ihr Einfluss auf die Klimasensitivität kann quantifiziert werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Klimasensitivitätsstudien, basierend auf erhöhten CO_2 -Konzentrationen, für das System EMAC/MLO mit und ohne interaktiv gekoppelte Chemie durchgeführt. Um die Linearität von Klimasensitivität und Rückkopplung in Abhängigkeit von der Antriebsstärke zu untersuchen, wurde eine ganze Reihe von CO_2 -Erhöhungsexperimenten angesetzt. Tabelle 4.1 fasst diese Simulationen zusammen und beschreibt die Änderung der CO_2 -Konzentration und ihren induzierten Strahlungsantrieb. Die CO_2 -Konzentration, welche im Referenzexperiment für das Jahr 2000 typische Konzentration von 367 ppmv beträgt, wurde in den Sensitivitätssimulationen verdoppelt (Experimente $2*\text{CO}_{2\text{MLO},\text{uncoup}}$ und $2*\text{CO}_{2\text{MLO},\text{coup}}$), vervierfacht (Experimente $4*\text{CO}_{2\text{MLO},\text{uncoup}}$ und $4*\text{CO}_{2\text{MLO},\text{coup}}$) und versechsfacht (Experimente $6*\text{CO}_{2\text{MLO},\text{uncoup}}$ und $6*\text{CO}_{2\text{MLO},\text{coup}}$). Des Weiteren wurden zwei Gleichgewichtssimulationen mit einer CO_2 -Konzentration von 442 ppmv durchgeführt (Experimente $442\text{CO}_{2\text{MLO},\text{uncoup}}$ und $442\text{CO}_{2\text{MLO},\text{coup}}$), um eine Simulation mit einem CO_2 -bedingten Strahlungsantrieb von ungefähr 1 Wm^{-2} zur Verfügung zu haben.

4.3 Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten NO_x - und CO-Emissionen

Auch die Rolle chemischer Rückkopplungen in Simulationen mit Nicht- CO_2 angetriebenen Störungen wird in der vorliegenden Arbeit untersucht. Als Beispiel für diese emissionsangetriebenen Klimagleichgewichtssimulationen, wird eine Erhöhung von anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen gewählt.

Abbildung 4.2 erklärt die Wirkungskette einer durch NO_x und CO angetriebenen Störung schematisch. Die Änderungen der Primäremissionen NO_x und CO verursachen keinen Strahlungsantrieb, da die Spurengase NO_x und CO selbst nicht strahlungswirksam sind. Sie

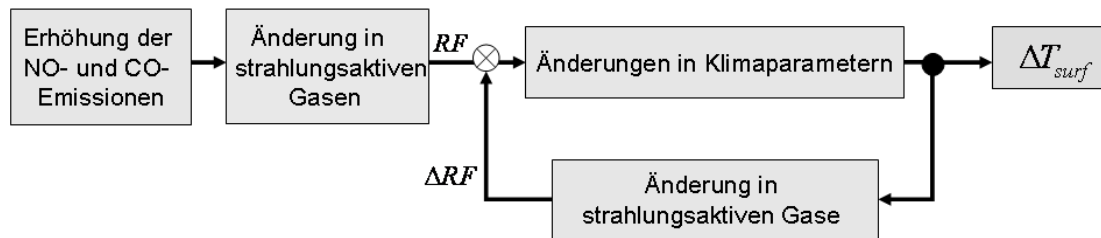


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung der Wirkungskette einer Klimagleichgewichtssimulation mit interaktiver Chemie, angetrieben durch eine Erhöhung der NO_x - und CO-Emissionen. Eine nähere Beschreibung befindet sich im Text.

agieren aber als Vorläufersubstanzen von strahlungsaktiven Gasen und ändern somit indirekt die Strahlungsbilanz der Atmosphäre. Dieser geänderte Strahlungsantrieb führt wie im oben beschriebenen CO_2 -Experiment wieder zu geänderten Klimaparametern, was zu einer weiteren Änderung der strahlungsaktiven Gase führt. In dieser Art von Experimenten ist die interaktiv gekoppelte Atmosphärenchemie sowohl für den Strahlungsantrieb über die Vorläufersubstanzen als auch für chemische Strahlungsrückkopplungen verantwortlich. Das experimentelle Konzept zur Separation der chemisch induzierten Strahlungsrückkopplung ist daher komplexer als im Fall der Simulationen, die durch reine CO_2 -Erhöhung angetrieben wurden (Abschnitt 4.2).

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird für die emissionsangetriebenen Klimasensitivitätsexperimente eine Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen um einen Faktor von 9 gewählt. Diese Skalierung verursacht einen indirekten Strahlungsantrieb über Ozon von 1.22 Wm^{-2} . Die Skalierung wurde so hoch gewählt, da bei einem Strahlungsantrieb von über 1 Wm^{-2} statistisch signifikante Responsemuster zu erwarten sind (z.B. Stuber, 2001). Die einfach unskalierten Emissionen erzeugen nur einen Strahlungsantrieb von 0.28 Wm^{-2} . In solchem Fall wäre das Signal für viele Klimaparameter zu gering um mit Simulationen von nur einigen Jahrzehnten Signal und Rauschen zu trennen. Wie Abbildung 4.3 zeigt, wurde sichergestellt, dass sich diese hohe Skalierung rechtfertigen lässt: Der Strahlungsantrieb von Ozon verläuft nahezu linear mit der Skalierung der anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen.

Um die Strahlungsrückkopplung durch interaktiv gekoppelte Atmosphärenchemie in emissionsangetriebenen Klimasensitivitätsexperimenten zu bestimmen, wurden drei Simulationen benötigt, die im Folgenden beschrieben und in Tabelle 4.1 zusammengefasst sind. Zuerst wurde eine Emissionserhöhungssimulation mit gekoppelter Chemie und vorgeschriebener SST durchgeführt, in der anthropogene NO_x - und CO-Emissionen verneunfacht wurden ($\text{NOX}/\text{CO}_{\text{SST},\text{coup}}$). Hier simulieren die geänderten Emissionen der Vorläufergase NO_x und CO die neuen Felder der strahlungsaktiven Gase, es sind keine physikalischen und chemischen Strahlungsrückkopplungen möglich. Eine weitere Klimagleichgewichtssimulation ohne interaktive Chemie, aber mit gekoppeltem Ozean wird konstruiert ($\text{NOX}/\text{CO}_{\text{MLO},\text{uncoup}}$). Hier werden die geänderten Ozon-, Methan- und Lachgas-Verteilungen, die sich aus dem skalier-

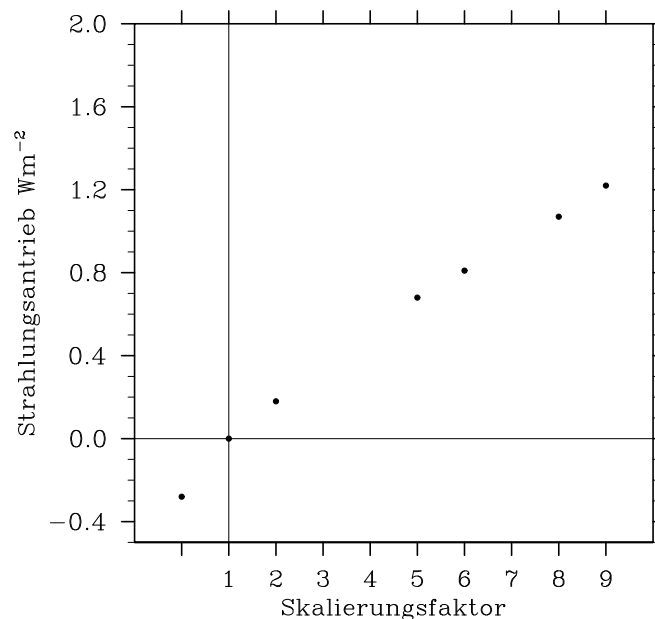


Abbildung 4.3: Linearer Zusammenhang von Strahlungsantrieb und Skalierungsfaktor von anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen.

ten SST-Experiment ergeben, in das Klima-Chemie-Modell als nicht-interaktive Konzentrationsfelder eingelesen und induzieren somit einen Strahlungsantrieb. In dieser Simulation sind physikalische Strahlungsrückkopplungen möglich, jedoch keine Strahlungsrückkopplung über die Chemie. Das ist eine Methode, die bisher in vielen Studien (z.B. Gauss et al., 2006; Shindell et al., 2005), die den Einfluss von Transportemissionen auf das Klima (via Vorläufersubstanzen) untersuchen, angewendet wurde. Im realen Klimasystem wird jedoch die chemische Konzentrationsänderung vom Klimaresponse, den sie auslöst, beeinflusst. Es ist also, im Sinne einer realistischen Erfassung des Klimasystems sinnvoll diesen Effekt mit zu berücksichtigen.

Aufgrund der erhöhten Rechenleistung, ist es mittlerweile auch möglich Klimagleichgewichtssimulation mit EMAC/MLO und interaktiv gekoppelter Chemie durchzuführen. Das Experiment $\text{NOX}/\text{CO}_{MLO,coup}$ beschreibt eine solche Klimagleichgewichtssimulation, in der die anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen verneunfacht wurden. Wie bereits anhand von Abbildung 4.2 erläutert wurde, sind in dieser Simulation sowohl Strahlungsantrieb als auch Rückkopplung über die Chemie möglich. Durch den Vergleich mit den analogen Simulationen ohne Chemie ($\text{NOX}/\text{CO}_{MLO,uncoup}$) ist somit die Identifikation der chemischen Rückkopplungen sowie ihrer Klimawirkung möglich.

Kapitel 5

Alternative Trennung von Strahlungsantrieb und -rückkopplung

In Kapitel 2.1.1 wurde die Limitierung des klassischen Konzepts des stratosphären-adjustierten Strahlungsantriebs als Maß für die zu erwartende Temperaturänderung bereits diskutiert. Um diese Einschränkung zu beheben, wurden in einigen Studien alternative Methoden für die Berechnung des Strahlungsantriebs vorgestellt. Es handelt sich hierbei meist um eine andere Definition von Antrieb und Klimaresponse als beim Konzept des stratosphären-adjustierten Strahlungsantriebs. So werden einige Änderungen von Klimaparametern (und damit Strahlungsrückkopplungen) als zum Antrieb gehörig betrachtet und nicht dem Response zugeschrieben (Hansen et al., 2005; Shine et al., 2003). Ein Beispiel ist der Strahlungsantrieb bei festgehaltener Bodentemperatur, der auch in Abbildung 2.1 beschrieben wurde (zero-surface-temperature-change RF). Die Studien von Shine et al. (2003), Hansen et al. (2005) und Sokolov (2006) bestätigen alle, dass dieser Antrieb eine ausgeprägtere Konstanz der Klimasensitivität liefert als der stratosphären-adjustierte Antrieb. Dies ist vor allem für Aerosolstörungen der Fall. Der stratosphären-adjustierte Strahlungsantrieb hat jedoch den Vorteil, dass er nicht von relativ unsicheren Klimarückkopplungen, wie z.B. Wolken abhängt (Solomon et al., 2007). Eine weitere Alternative die Limitierung der Gültigkeit der linearen Beziehung zwischen Bodentemperatur und Strahlungsantrieb zu überwinden, ist die im Folgenden Abschnitt vorgestellte sogenannte Gregory-Approximation (Gregory et al., 2004; Gregory und Webb, 2007).

5.1 Gregory-Approximation

Die auf den Studien von Gregory et al. (2004) und Gregory und Webb (2007) basierende Methode der Strahlungsantriebsberechnung wird im Folgenden als Gregory-Approximation bezeichnet. Bei dieser Methode werden während der Einschwingphase einer Klimagleichgewichtssimulation der Strahlungsantrieb RF (in Wm^{-2}) und der Rückkopplungsparameter α (in $\text{Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$), bzw. die Klimasensitivität λ ($\lambda=-1/\alpha$) (in K/Wm^{-2}) durch die Regression der global gemittelten Nettostrahlungsflussänderung $N(t)$ am Oberrand der Atmosphäre

(TOA) und der global gemittelten Bodentemperaturänderung $\Delta T_{surf}(t)$ bestimmt. Gleichung 5.1 beschreibt den linearisierten Zusammenhang zwischen der nach unten gerichteten Nettostrahlungsflussänderung $N(t)$, dem Strahlungsantrieb RF und dem Strahlungsresponse $H(t)$, der als proportional zur Bodentemperaturänderung $\Delta T_{surf}(t)$ angenommen wird (siehe Kapitel 2).

$$N(t) = RF - H(t) \approx RF - \alpha * \Delta T_{surf}(t) \quad (5.1)$$

Zum Zeitpunkt $t=0$ setzt der Strahlungsantrieb ein ($N(0) = RF$, da $\Delta T_{surf}=0$). Nach Erreichen des Gleichgewichts ist die Strahlungsungleichgewichte wieder ausgeglichen und es gilt:

$$N(\infty) = 0 \Rightarrow RF = \alpha * \Delta T_{surf}^{equ} = -1/\lambda * \Delta T_{surf}^{equ} \quad (5.2)$$

Abbildung 5.1 zeigt die Regression der jahresgemittelten globalen Nettostrahlungsflussänderung (TOA und an der Tropopause) und der Temperaturänderung während einer Einschwingphase von 20 Jahren in einem $4*CO_2$ -Erhöhungsexperiment mit dem Klimamodell des UK Met Office HadSM3 (Williams et al., 2001). Gleichung 5.2 zufolge gibt der Ordinatenabschnitt der Regressionsgeraden den Strahlungsantrieb RF und die Steigung der Regressionsgeraden den Rückkopplungsparameter $-\alpha$ wieder. Die Streuung um die Regressionsgerade ist auf die interne Variabilität des Klimasystems zurückzuführen. Die Simulation ist im Gleichgewicht, wenn die Strahlungsflussänderung wieder Null erreicht (Gregory et al., 2004).

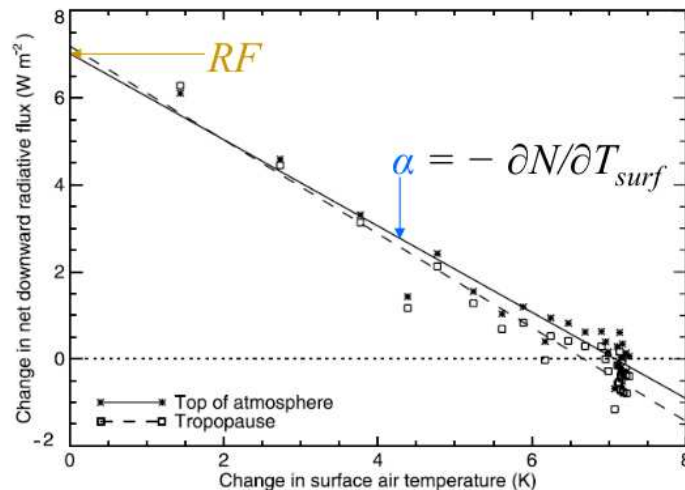


Abbildung 5.1: Entwicklung der jahresgemittelten globalen Strahlungsflussänderung $N(t)$ an TOA und an der Tropopause und der jahresgemittelten globalen Bodentemperaturänderung ΔT_{surf} in einem $4*CO_2$ -Klimagleichgewichtsexperiment. Gepunktete Linie $N=0$. Das zugrunde liegende Modell ist das an einen Decksichtozean gekoppelte Klimamodell des UK Met Office HadSM3 (Williams et al., 2001). Abbildung ist der Veröffentlichung von Gregory et al. (2004) entnommen.

Diese Methode impliziert eine praktische Unterscheidung von Strahlungsantrieb und Rückkopplung: der Strahlungsantrieb ist wiederum die Änderung der Nettostrahlung $N(t)$ durch die Anwesenheit einer Störung. Er entwickelt sich schnell in Vergleich zur Zeitskala des Klimasystems (wie z.B. auch die stratosphärische Temperaturadjustierung) aber nicht instantan. Alle innerhalb weniger Tage und Wochen eintretenden Klimaänderungen gelten nun als Teil des Strahlungsantriebes: sie beeinflussen den Y-Abschnitt der Regressionsgeraden. Die Strahlungsrückkopplungen werden mit der langsamen Änderung im Nettostrahlungsfluss identifiziert, die mit dem Klimaresponse verbunden sind, sie bestimmen die Steigung der Geraden (Gregory et al., 2004).

Der durch die Gregory-Approximation berechnete Strahlungsantrieb auf eine gegebene Störung beinhaltet somit neben der Anpassung der Stratosphärentemperatur an die Klimastörung alle schnellen Reaktionen des Systems, wie zum Beispiel den indirekten Aerosoleffekt oder schnelle Anpassung von Wolkenparametern auf eine geänderte statische Stabilität. Durch diese alternative Aufteilung von Strahlungsantrieb und Rückkopplung, unterscheidet sich der Wert des so berechneten Strahlungsantriebs physikalisch von der klassischen Methode des stratosphären-adjustierten Strahlungsantriebes. Ein entscheidender Vorteil der Gregory-Approximation ist die Berechnung von Strahlungsantrieb und Klimasensitivitätsparameter während der Einschwingphase einer Klimagleichgewichtssimulation. Außerdem liefert sie einen faireren gedanklichen Ansatz, da nun alle schnellen systeminternen Rückkopplungsprozesse gleich behandelt werden. Der Nachteile dieser Methode ist die Ungenauigkeit in der Bestimmung von Strahlungsantrieb und Klimasensitivitätsparameter, da es sich hier um ein statistisches Verfahren handelt. Die natürliche Variabilität der Nettostrahlungsbilanz muss klein genug sein, um die Regressionsgerade hinreichend genau bestimmen zu können. Studien (z.B. Gregory et al., 2004) haben gezeigt, dass dies für Simulationen mit hohem Strahlungsantrieb (z.B. CO₂-Verdoppelungsexperimente) gut funktioniert. Bei kleinen Strahlungsantrieben besteht die Möglichkeit ein Ensemble aus kurzen Modelleinschwingphasen zu bilden um so die Unsicherheit zu reduzieren (siehe Abschnitt 5.3). Dies ist aber mit erhöhtem Aufwand verbunden.

Die Berechnung des Strahlungsantriebs mit der Gregory-Approximation wurde in Ponater (2009) für verkehrsinduzierte Emissionen angewendet. Da die Strahlungsantriebe von verkehrsinduzierten Störungen sehr klein sind ($<0.2 \text{ Wm}^{-2}$), mussten sie skaliert werden. In solchen Fällen muss gewährleistet sein, dass die Klimasensitivität nicht signifikant von der Skalierung abhängt. Die Berechnung wurde im Rahmen dieser Studie für Ozonstörungen von skalierten transportbezogenen Emissionen aus Luftverkehr, Schiffsverkehr und Straßenverkehr in zwei unterschiedlichen Klimamodellen durchgeführt. Auch bei Einsetzen der Gregory-Approximation ergab sich kein einheitlicher Klimasensitivitätsparameter innerhalb eines Modellsystems (Ponater, 2009).

5.2 Gregory-Approximation in Klimagleichgewichtssimulationen mit EMAC/MLO

In meiner Doktorarbeit wird die oben beschriebene Gregory-Approximation auf die Einschwingphase der Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten CO_2 -Konzentrationen (442-ppmv- CO_2 , $2*\text{CO}_2$, $4*\text{CO}_2$) mit dem Modellsystem EMAC/MLO mit und ohne interaktiv gekoppelter Chemie angewendet.² Vor allem für die Experimente mit interaktiver Chemie wird erwartet, dass die Gregory-Approximation gegenüber der konventionellen Methode aufschlussreich sein könnte, da sie alle schnellen Rückkopplungen über die Chemie berücksichtigt.

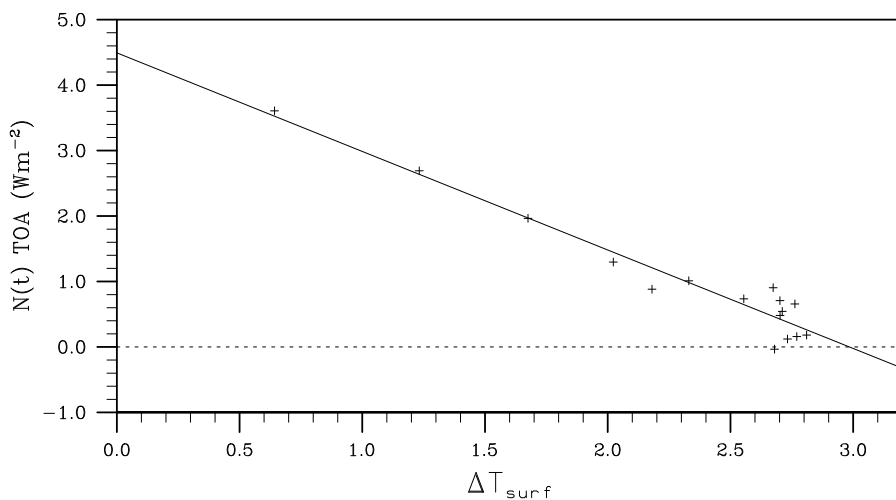


Abbildung 5.2: Entwicklung der jahresgemittelten globalen Strahlungsflussänderung $N(t)$ an TOA und der jahresgemittelten globalen Bodentemperaturänderung ΔT_{surf} im CO_2 -Verdoppelungsexperiment mit interaktiv gekoppelter Chemie ($2*\text{CO}_{2MLO,coup}$).

Abbildung 5.2 zeigt das Ergebnis der Gregory-Approximation für das $2*\text{CO}_2$ -Erhöhungsexperiment mit Chemie für eine Einschwingphase von 20 Jahren. Der Y-Abschnitt gibt mit dem Wert 4.26 Wm^{-2} den Strahlungsantrieb an und die Steigung der Geraden bestimmt den Rückkopplungsparameter, aus dem sich ein Klimasensitivitätsparameter der Größe 0.73 K/Wm^{-2} ergibt.³

Tabelle 5.1 fasst die Ergebnisse für Strahlungsantrieb und Klimasensitivitätsparameter sowohl berechnet nach der Gregory-Approximation (RF_{greg} , λ_{greg}) als auch für die konventionelle Methode des stratosphären-adjustierten Strahlungsantriebs (RF_{adj} , λ_{adj}) für alle CO_2 -Erhöhungsexperimente ohne interaktive Chemie zusammen. Die angegebenen Unsi-

²Für die Gregory-Approximation bedient man sich somit eines Nebenproduktes der im Rahmen meiner Arbeit durchgeführten Gleichgewichtssimulationen, der jeweiligen Einschwingphase.

³Eine Rückkehr zur Strahlungsbilanz des Referenzexperimentes (Nulllinie der Y-Achse) wird in dieser Simulation nicht erreicht (Modellartefakt).

Tabelle 5.1: Global gemittelttes Jahresmittel des Strahlungsantriebes und des Klimasensitivitätsparameters, berechnet nach der Methode des stratosphären-adjustierten Strahlungsantriebs (RF_{adj} , λ_{adj}) und mit Hilfe der Gregory-Approximation (RF_{greg} , λ_{greg}) in CO₂-Erhöhungsexperimenten ohne Chemie. Unsicherheiten sind durch die Standardabweichung der Regressionsparameter bestimmt (siehe Storch und Zwiers, 1999, S.152). Für das 442-ppmv-CO₂- und das 2*CO₂-Erhöhungsexperiment wurde auf unterschiedliche Startpunkte (Realisierungen) aufgesetzt (a-c) und das Ensemble gebildet. Der Ensemblemittelwert und die Ensemblestandardabweichung wurden direkt aus den in a-c gezeigten Werte für Strahlungsantrieb und Klimasensitivitätsparameter berechnet.

Experiment	RF_{adj} [Wm ⁻²]	λ_{adj} [K/Wm ⁻²]	RF_{greg} [Wm ⁻²]	λ_{greg} [K/Wm ⁻²]
442 ppmv (a)	1.065	0.73	1.08 ± 0.24	0.68 ± 0.39
442 ppmv (b)			1.00 ± 0.20	0.74 ± 0.39
442 ppmv (c)			1.01 ± 0.14	0.86 ± 0.20
442 ppmv, Ens.			1.03 ± 0.12	0.76 ± 0.26
2*CO ₂ (a)	4.13	0.70	4.26 ± 0.21	0.73 ± 0.06
2*CO ₂ (b)			4.06 ± 0.38	0.75 ± 0.12
2*CO ₂ (c)			4.30 ± 0.24	0.72 ± 0.07
2*CO ₂ , Ens.			4.21 ± 0.13	0.73 ± 0.04
4*CO ₂	8.93	0.91	7.51 ± 0.28	1.11 ± 0.04

cherheiten sind durch die Standardabweichung der Regressionsparameter bestimmt (siehe Storch und Zwiers, 1999, S.152). Für das 442-ppmv-CO₂- und das 2*CO₂- Erhöhungsexperiment wurden jeweils drei Einschwingphasen simuliert, aufgesetzt auf verschiedenen Startpunkten, um die Unsicherheit der Regressionsgeraden durch die Bildung des Ensemblemittels zu reduzieren. Eine nähere Beschreibung und Bewertung der Unsicherheiten erfolgt in Abschnitt 5.3. Für das 442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperiment liegt der nach der Gregory-Approximation bestimmte Strahlungsantrieb je nach Aufsetzpunkt, über oder unter dem stratosphären-adjustierten Wert von 1.065 Wm⁻². Der Ensemblemittelwert der Gregory-Approximation ist mit 1.03 Wm⁻² in etwa genauso groß wie der stratosphären-adjustierte Wert des Strahlungsantriebs, eine hervorragende Übereinstimmung, die aber angesichts der relativ hohen Unsicherheit des Wertes aus der Regressionsmethode teilweise zufällig sein könnte. Im CO₂-Verdoppelungsexperiment liegt der Ensemblemittelwert der Gregory-Approximation mit 4.21 Wm⁻² über dem stratosphären-adjustierten Wert von 4.13 Wm⁻², die beiden Werte unterscheiden sich jedoch nicht signifikant. Qualitative Übereinstimmung liefern die mit ECHAM5 durchgeführten CO₂-Verdoppelungsexperimente mit neun Einschwingphasen von 20 Jahren (Ponater 2010, person. Mitt.). Der Klimasensitivitätsparameter des Ensembles ist im 2*CO₂- und 442-ppmv-CO₂-Experiment mit 0.73 K/Wm⁻² ungefähr gleich groß.

Der nach der Gregory-Approximation bestimmte Strahlungsantrieb ist in allen CO₂-Erhöhungsexperimenten mit interaktiv gekoppelter Chemie (siehe Tabelle 5.2) größer als in den oben beschriebenen Erhöhungsexperimenten ohne interaktiver Chemie (siehe Tabelle 5.1). Das heißt die schnellen Anpassungen des Modellsystems, die über die Chemie wirken stellen positive Strahlungsrückkopplungen dar und erhöhen den Strahlungsantrieb im Bezug auf den

Tabelle 5.2: Global gemittelttes Jahresmittel des Strahlungsantriebes und des Klimasensitivitätsparameters, berechnet nach der Methode des stratosphären-adjustierten Strahlungsantriebs (RF_{adj} , λ_{adj}) und mit Hilfe der Gregory-Approximation (RF_{greg} , λ_{greg}) in CO₂-Erhöhungsexperimenten mit dem Modellsystem EMAC/MLO mit gekoppelter Chemie. Unsicherheiten sind durch die Standardabweichung der Regressionsparameter bestimmt.

Experiment	RF_{adj} [Wm ⁻²]	λ_{adj} [K/Wm ⁻²]	RF_{greg} [Wm ⁻²]	λ_{greg} [K/Wm ⁻²]
442 ppmv	1.065	0.68	1.27 ± 0.29	0.58 ± 0.31
2*CO ₂	4.13	0.63	4.49 ± 0.24	0.66 ± 0.10
4*CO ₂	8.93	0.84	7.72 ± 0.26	0.96 ± 0.04

stratosphären-adjustierten Wert. Demgegenüber erscheint der Klimasensitivitätsparameter in der Simulation mit interaktiver Chemie entsprechend reduziert, wobei Tabelle 5.2 zeigt, dass die Unsicherheit des Klimasensitivitätsparameters bei nur einer verfügbaren Simulation sehr groß ist.

Die Studie von Gregory und Webb (2007) zeigt, dass eine Zerlegung der Nettostrahlungsflussänderung in langwellige und kurzwellige Strahlungsflussänderung für bewölkten und unbewölkten Fall möglich ist und so der Einfluss der Anwesenheit von Wolken auf den Strahlungsantrieb und vor allem die Wolkenrückkopplung mit der Gregory-Approximation bestimmt werden kann. Im so berechneten Wolkenstrahlungsantrieb (Cloud Radiative Forcing, ΔCRF) werden alle schnellen Anpassungen der Wolken dem Antrieb zugeschrieben. Des Weiteren beinhaltet der Wolkenstrahlungsantrieb nach der Gregory-Approximation den Strahlungsantrieb durch die bloße Anwesenheit der Wolken (instantanes CRF oder sogenannter Cloud-Masking-Effekt).

Diese Aufteilung wurde im Rahmen dieser Arbeit am Beispiel des CO₂-Verdoppelungsexperiments mit und ohne interaktive Chemie ($2^*CO_{2MLO,coup}$ und $2^*CO_{2MLO,uncoup}$) angewendet. Abbildung 5.3 zeigt die zeitliche Änderung des Strahlungsflusses für die kurzwellige und langwellige Komponente des unbewölkten Falles und des bewölkten Falles, sowie die Nettostrahlungsflussänderung, aufgetragen gegen die Änderung der Bodentemperatur für die Simulation $2^*CO_{2MLO,coup}$. Aus Abbildung 5.3 und Tabelle 5.3 wird deutlich, dass der Nettostrahlungsantrieb weitgehend vom Antrieb durch den langwelligen wolkenfreien Anteil, also durch den primären CO₂-Antrieb, bestimmt ist. Der Nettostrahlungsantrieb erreicht im Gleichgewicht Null, während die langwellige Komponente des unbewölkten Falls negativ wird. Verantwortlich für die Abnahme dieser Komponente ist die Erwärmung des Systems, die zu einer verstärkten Abstrahlung führt. Die kurzwelligen Strahlungsflusswerte im unbewölkten Fall hingegen nehmen, ausgehend von dem geringen kurzwelligen Strahlungsantrieb durch CO₂, mit der Zeit zu. Dies ist darauf zurückzuführen, dass das System mehr Wasserdampf aufnimmt, was zu verstärkter Absorption von Wasserdampf führt. Außerdem trägt die Verringerung der Albedo bei, da Schnee und Eis zurückgehen. Der Wolkenstrahlungsantrieb ist sowohl im Kurzwelligen als auch im Langwelligen nicht Null; es gibt also einige Änderungen in den Wolkenparametern, die sich schnell an das zusätzliche CO₂ im System anpassen. Der kurzwellige Wolkenstrahlungsantrieb ist positiv und nimmt mit

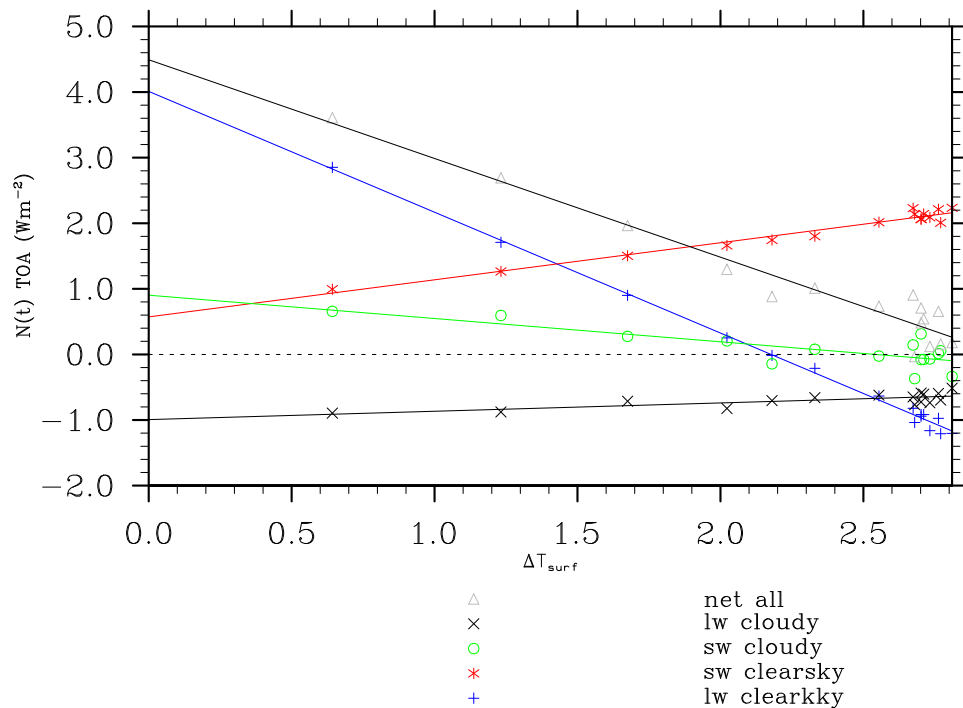


Abbildung 5.3: Entwicklung der jahresgemittelten globalen Strahlungsflussänderungen (gezeigt werden die Änderungen des Nettostrahlungsflusses und der langwelligen und kurzwelligen Komponenten des Strahlungsfluss im unbewölkten Fall und im bewölkten Fall) an TOA und der jahresgemittelten globalen Bodentemperaturänderung ΔT_{surf} im CO_2 -Verdoppelungsexperiment mit interaktiv gekoppelter Chemie ($2*\text{CO}_2_{MLO,coup}$).

der Zeit ab, während der langwellige Wolkenstrahlungsantrieb positiv ist und mit der Zeit zunimmt. Dies deutet auf mehr Wolken im erwärmten System hin, was wegen der Komplexität der Wolkenstrahlungsrückkopplung aber detaillierter untersucht werden müsste. Der Nettowolkenstrahlungsantrieb ist negativ, das heißt die schnelle Anpassung der Wolken reduziert den durch CO_2 -verursachten Antrieb. Aus Abbildung 5.3 geht auch hervor, dass der kurzwellige Wolkenstrahlungsantrieb am stärksten verrauscht ist, was sich auf die Unsicherheit der Nettostrahlungsflussänderung auswirkt (siehe Tabelle 5.3). Vergleicht man die mit EMAC/MLO erhaltenen Werte mit der in Gregory und Webb (2007) durchgeführten Analyse des Wolkenstrahlungsantriebs mit mehreren Klimamodellen, so zeigen die Vorzeichen des Wolkenstrahlungsantriebs für die langwellige, kurzwellige und netto Komponente in EMAC/MLO in die gleiche Richtung wie bei den meisten anderen Modellen.

Aus Tabelle 5.3 ist ersichtlich, dass es signifikante Unterschiede zwischen dem Wolkenstrahlungsantrieb im $2*\text{CO}_2$ -Erhöhungsexperiment mit und ohne interaktive Chemie gibt. Im Vorzeichen von kurzwelliger und langwelliger Komponente stimmen sie überein, aber die Werte des kurzwelligen, langwelligen und netto Wolkenstrahlungsantriebs sind betragsmäßig kleiner im Experiment mit Chemie. Die schnelle Anpassung der Wolken an die CO_2 -Erhöhung wirkt also im Experiment mit interaktiver Chemie anders. Der Grund könnte ein Eingriff chemischer Änderungen, speziell von Ozon, in die statische Stabilität der Troposphäre sein.

Tabelle 5.3: Global gemittelttes Jahresmittel des Strahlungsantriebes und des Klimasensitivitätsparameters, berechnet nach der Gregory-Approximation für die Nettostrahlungsflüsse des unbewölkten Falls (lw clear, sw clear) und des bewölkten Falls (lw cloudy, sw cloudy) im CO₂-Verdoppelungsexperiment ohne und mit Chemie.

Experiment	lw clear [Wm ⁻²]	sw clear [Wm ⁻²]	lw cloudy [Wm ⁻²]	sw cloudy [Wm ⁻²]	net cloudy [Wm ⁻²]
2*CO ₂ _{MLO,coup}	4.01 ± 0.03	0.57 ± 0.03	-0.99 ± 0.09	0.90 ± 0.07	-0.09
2*CO ₂ _{MLO,uncoup}	4.09 ± 0.04	0.84 ± 0.02	-1.82 ± 0.03	1.18 ± 0.06	-0.64

Wie in Abschnitt 5.3 näher beschrieben wird, ist es aufgrund der Unsicherheiten schwierig die Unterschiede zwischen den verschiedenen Experimenten zu bewerten, vor allem in den Experimenten mit interaktiver Chemie, in denen es aus Rechenzeitgründen nicht möglich ist mehrere Einschwingphasen zu berechnen.

5.3 Kritische Betrachtung der Gregory-Approximation

Tabelle 5.1 zeigt, dass die Streuung von Strahlungsantrieb und Klimasensitivitätsparameter um den Mittelwert ziemlich groß ist. Bei kleineren Störungen, wie im Falle des 442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperimentes, führt das zu einem für die Interpretation der Ergebnisse ungünstigem Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Unterschiede für die Simulation mit und ohne Chemie sind nur dann interpretierbar, wenn die durch die Regression bestimmten Strahlungsantriebe und Klimasensitivitäten signifikant voneinander abweichen. In Abbildung 5.4 ist die Regressionsgerade für das 442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperiment dargestellt. Es ist offensichtlich, dass eine starke Streuung um die Regressionsgerade vorliegt. Wie bereits in Abschnitt 5.2 beschrieben, wurde diese Unsicherheit reduziert, indem für die 442-ppmv-CO₂- und für die 2*CO₂-Simulationen ohne Chemie drei Einschwingphasen berechnet wurden, und das Ensemble dieser Simulation gebildet wurde (siehe Tabelle 5.1). Das Ergebnis von Strahlungsantrieb und Klimasensitivität nach der Gregory-Approximation, hängt stark vom Aufsetzpunkt, also der Realisierung, ab, es wurde aber kein Zusammenhang zwischen der Anomalie des Aufsetzpunktes (Abweichung vom Mittel des Referenzlaufes) und den Werten von Strahlungsantrieb und Klimasensitivitätsparameter gefunden. Durch die Ensemblebildung kann die statistische Unsicherheit für den Strahlungsantrieb im 442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperiment von etwa 20% auf 10% und im 2*CO₂-Erhöhungsexperiment von etwa 10% auf 3% reduziert werden.

Da die Gregory-Approximation eine erheblich größere Unsicherheit in den Ergebnissen von Strahlungsantrieb und Klimasensitivitätsparameter als die stratosphären-adjustierten Methode zeigt, ist es schwierig die Ergebnisse zu interpretieren wenn keine Ensemblemittelwerte gebildet werden können, die die Unsicherheit deutlich reduzieren. Diese Ensemblebildung ist aber für die rechenzeitintensiven interaktiv gekoppelten Klima-Chemie-Modelle auf Grund des hohen Ressourcenbedarfs zu aufwendig. Wie sich zeigen wird (Kapitel 7) können auch

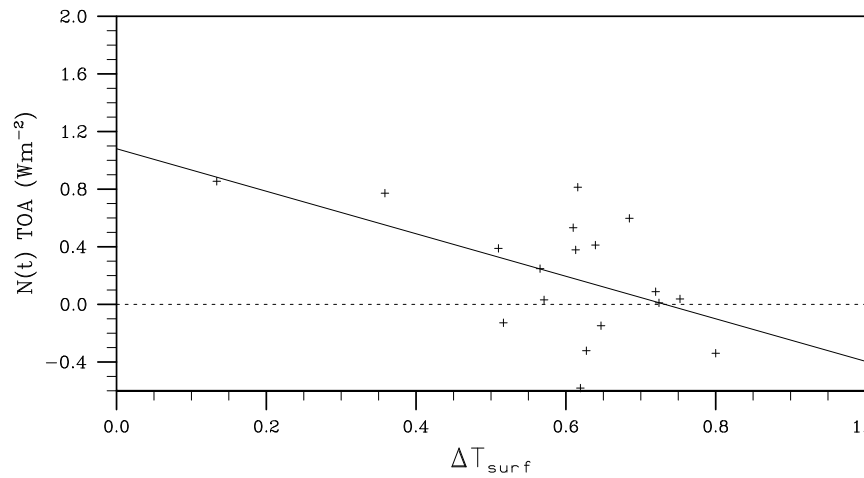


Abbildung 5.4: Entwicklung der jahresgemittelten globalen Strahlungsflussänderung $N(t)$ an TOA und der jahresgemittelten globalen Bodentemperaturänderung ΔT_{surf} . Dargestellt sind die Ergebnisse für ein 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment ohne Chemie.

nicht immer so große Strahlungsantriebe als Störung eingesetzt werden, dass sich das Problem auf diese Weise umgehen ließe (wie beim $2*CO_2$ - und $4*CO_2$ -Experiment). Aufgrund der Unsicherheit in der Bestimmung von Strahlungsantrieb und Klimasensitivität bei der Gregory-Approximation, wird deshalb in dieser Arbeit weiterhin das Konzept des stratosphären-adjustierten Strahlungsantriebs verwendet.

Kapitel 6

Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten CO₂-Konzentrationen

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten CO₂-Konzentrationen zusammengefasst. In Abschnitt 6.1 und 6.2 wird der Gleichgewichtsresponse der strahlungsaktiven Spurenstoffe (Ozon, Methan und Lachgas) sowie der Gleichgewichtsresponse ausgewählter physikalischer Klimaparameter in einer CO₂-Verdoppelungssimulationen mit interaktiver Chemie vorgestellt. Der Response strahlungsaktiver Gase sowie die Responseänderung in physikalischen Größen aufgrund interaktiver Chemie führt zu Strahlungsrückkopplungen (Kapitel 4), die in Abschnitt 6.3 dargestellt werden. Abschnitt 6.4 zeigt die Strahlungsrückkopplungen in weiteren CO₂-Erhöhungsexperimenten, um die Linearität in Abhängigkeit von der Rückkopplungsstärke und der Antriebsstärke der CO₂-Erhöhung zu untersuchen. Weiterhin werden in Abschnitt 6.5 die chemischen Strahlungsrückkopplungen den physikalischen Rückkopplungen und dem Strahlungsantrieb, der durch anthropogene Emissionen bestimmt ist, gegenübergestellt.

6.1 Response strahlungsaktiver Gase im CO₂-Verdoppelungsexperiment

6.1.1 Ozon

Eine Verdoppelung der CO₂-Konzentrationen in einer Simulation mit interaktiv gekoppelter Chemie führt durch die geänderten Klimaparameter (Temperatur, Feuchte, Niederschlag usw.) auch zu einer Ozonänderung. So bedingt beispielsweise eine Temperaturänderung einige veränderte ozonproduzierende und ozonabbauende Gasphasenreaktionen. Des Weiteren beeinflusst die geänderte Dynamik die lokalen Ozonkonzentrationen; insbesondere führt eine Änderung des Tropical-upwellings (Definition siehe Abschnitt 2.4) zu geändertem Ozoneintrag in die Stratosphäre (z.B. Garny, 2010).

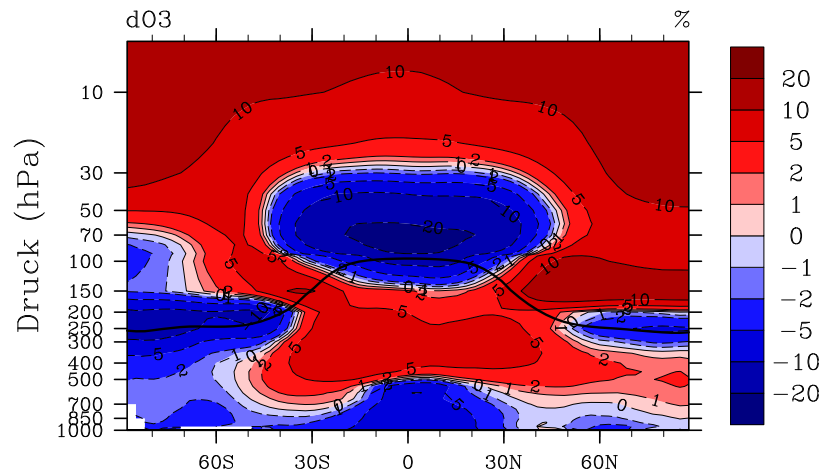


Abbildung 6.1: Zonalmittel (Jahresmittel) der relativen Änderung des Ozonmischungsverhältnisses auf Grund einer CO₂-Verdoppelung (in % Volumenmischungsverhältnis im Bezug auf die ungestörte Referenzsimulation). Der zugrunde liegende Mittelungszeitraum beträgt 25 Jahre. Die schwarze Linie markiert die Lage der Tropopause des Referenzexperimentes. In Abbildung A1 (Anhang) ist das dargestellte Ozonänderungsmuster mit einem Signifikanztest hinterlegt.

Abbildung 6.1 zeigt die prozentuale Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses⁴ in der CO₂-Verdoppelungssimulation relativ zur Referenzsimulation, wobei beide Simulationen mit gekoppelter Chemie gerechnet wurden. Eine starke und signifikante Abnahme des Ozonmischungsverhältnisses ist in der unteren tropischen Stratosphäre zu verzeichnen.⁵ Die Abnahme erreicht hier ein Minimum von über -20% in einer Höhe von 70 hPa, nimmt dann monoton mit der Höhe ab bis in 30 hPa wieder positive Werte erreicht werden. Die Ozonabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre ist Folge von verstärktem Tropical-upwelling, das durch erhöhte Wellenaktivität in einem wärmeren Klima verursacht wird (Garny, 2010). Um das Tropical-upwelling in Erhöhungsexperimenten zu analysieren wird im Folgenden die stratosphärische Residualzirkulation verwendet. Sie beschreibt die im zonalen Mittel stattfindenden meridionalen Transportprozesse und wird als mittlere Massenzirkulation in der Einheit kg/s angegeben. Für eine nähere theoretische Beschreibung der Residualzirkulation sei an dieser Stelle auf Garny (2010) verwiesen. In Abbildung 6.2 ist in schwarzen Isolinien die Klimatologie der Residualzirkulation hinterlegt. Die negativen Werte der Residualzirkulation bedeuten einen Massentransport gegen und die positiven einen Massentransport im Uhrzeigersinn. Das Änderungsmuster der Residualzirkulation infolge einer CO₂-Verdoppelung ist in Farbe dargestellt (siehe Abbildung 6.2). Deutlich zu erkennen ist ein stärkeres Aufsteigen in der unteren tropischen Stratosphäre (30°S-20°N, 100 hPa). In der Südhemisphäre wird das verstärkte Aufsteigen durch verstärktes Absinken in den Extratropen balanciert. In der Nordhemisphäre ist bei 20°N abgeschwächtes Aufsteigen und in den nördlichen polaren Breite abgeschwächtes Absinken zu verzeichnen. Durch das verstärkte Tropical-upwelling

⁴In der vorliegenden Arbeit wird der Begriff Mischungsverhältnis immer für das Volumenmischungsverhältnis verwendet.

⁵Auf eine Darstellung der statistischen Signifikanz gemäß dem Student-t-Test wird aus Gründen der Übersicht an dieser Stelle verzichtet. Eine detaillierte Beschreibung der statistischen Signifikanz von chemischen Klimaänderungsmustern ist aber im Anhang dieser Arbeit zu finden (Abbildung A1).

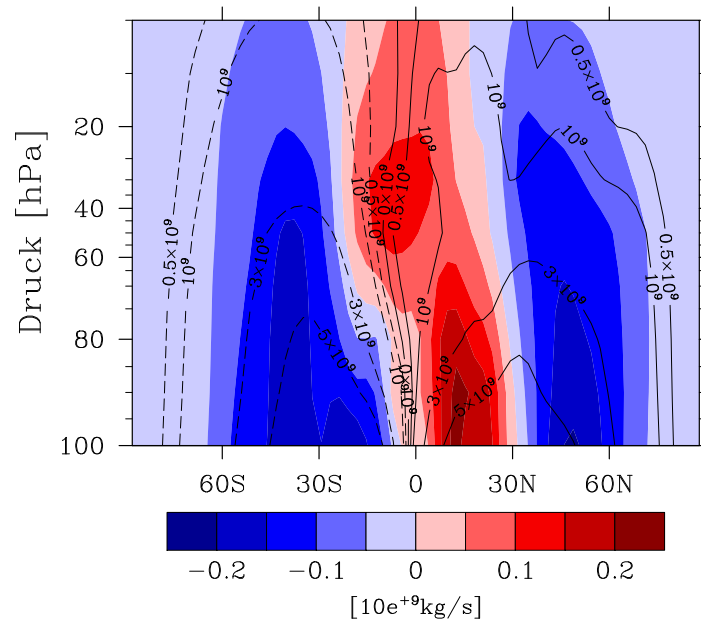


Abbildung 6.2: Zonalmittel der Änderung der zonalen massengewichteten Residualzirkulation (Jahresmittel) in der Stratosphäre (in kg/s) als Folge einer CO₂-Verdoppelung. In schwarzen Isolinien ist die Klimatologie der Residualzirkulation hinterlegt (gestrichelt für positive und durchgezogen für negative Werte). Negative Werte in der Residualzirkulation bedeuten einen Massentransport gegen und positive Werte einen Massentransport im Uhrzeigersinn.

werden verstärkt ozonarme Luftmassen aus der tropischen Troposphäre in die untere tropische Stratosphäre transportiert und verursachen somit eine Ozonabnahme relativ zur Referenzsimulation. Diese Ergebnisse stehen im Einklang mit früheren Modellstudien. Liao et al. (2006), Deckert und Dameris (2008) und Garny (2010) finden in Simulationen mit vorgeschriebener erhöhter SST auch eine Ozonabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre, was eindeutig von verstärktem Tropical-upwelling herrührt. Die CO₂-induzierte stratosphärische Abkühlung spielt für das Ozonänderungsmuster der unteren Stratosphäre nur eine untergeordnete Rolle.

Im Gegensatz zur unteren Stratosphäre ist Ozon in der mittleren Stratosphäre relativ kurzlebig, da hier die Photolyse relativ schnell wirksam wird (Dameris, 2010); deshalb spielt der Transport hier nur eine untergeordnete Rolle. Hier bestimmen chemischen Reaktionen die Ozonkonzentration. Die wichtigsten Ozonabbauzyklen in diesem Bereich sind die Reaktionen über die Katalysatoren ClO_x, NO_x und HO_x (siehe Reaktion 2.13- 2.15). Die Ozonzerstörungsrate über diese Katalysatoren sind stark temperaturabhängig. So ist die Zunahme der Ozonkonzentrationen in Abbildung 6.1 in der unteren extratropischen und in der mittleren tropischen Stratosphäre auf die Abkühlung der Stratosphäre zurückzuführen. Eine Temperaturabnahme führt hier zu einer langsameren Ozonzerstörung, was höhere Ozonkonzentrationen nach sich zieht (z.B. Haigh und Pyle, 1982; Portmann und Solomon, 2007). Transporte durch die Brewer-Dobson-Zirkulation erzeugen dann auch in die hohen Breiten der mittleren und unteren Stratosphäre höhere Ozonkonzentrationen. Dagegen führen die niedrigeren stratosphärischen Temperaturen in der polaren unteren Stratosphäre im Südwin-

ter zur verstärkten Bildung von PSC und somit zu potenziell stärkerem Ozonabbau durch heterogene chemische Reaktionen (Dameris, 2010), was die Ozonabnahme in der unteren Stratosphäre bei 60°S-90°S erklärt.

Um die Temperaturabhängigkeit der Ozonzerstörungsraten genauer zu untersuchen, ist in Abbildung 6.3 der zonale Gleichgewichtsresponse der Ozonkatalysatoren NO_y (=N, NO, NO₂, NO₃, N₂O₅, HNO₃, HNO₄), Cl_y (=Cl, ClO, ClOH, Cl₂O₂, Cl₂, HCl, HOCl, ClONO₂) und HO_x (=OH, HO₂) dargestellt. Die CO₂-Verdoppelung im Experiment mit gekoppelter Chemie führt in der Stratosphäre sowohl zu einer prozentualen Abnahme in den NO_y-Konzentrationen (siehe Abbildung 6.3 a) als auch in den Cl_y-Konzentrationen (siehe Abbildung 6.3 b). Die NO_y-Abnahme in der Stratosphäre (Abbildung 6.3 a) lässt sich teilweise durch eine verstärkte PSC-Sedimentation in einer kälteren Stratosphäre erklären, welche zu erhöhter Denitrifizierung vor allem in der Südhemisphäre führt (Dameris, 2010). Außerdem verursacht verstärktes Tropical-upwelling geringere stratosphärische NO_y-Konzentrationen. Die stratosphärische Abnahme von Cl_y in Abbildung 6.3 b wiederum, lässt sich durch eine abgeschwächte Photolyse von FCKW erklären. Auch hier beeinflusst das verstärkte Tropical-upwelling das Cl_y-Änderungsmuster der unteren Stratosphäre. Die Abnahme von NO_y schwächt nun den oberhalb von 30 km dominierenden katalytischen Ozonabbau durch den NO_x-Zyklus und führt zu einer Ozonzunahme. Auch die Abnahme von Cl_y in der mittleren Stratosphäre, schwächt den in 15-30 km dominierenden katalytischen Ozonabbau durch den Chlor-Zyklus. Der katalytische HO_x-Zyklus, der unterhalb 15 km wichtig ist, modifiziert das Ozonänderungsmuster der unteren Stratosphäre durch die dort stattfindende HO_x-Zunahme in den Extratropen und die HO_x-Abnahme in den Tropen (siehe Abbildung 6.3 c).⁶

Der Ozonresponse in der Troposphäre ist durch eine Abnahme in den südlichen Extratropen sowie in der gesamten unteren Troposphäre und durch eine Zunahme in der mittleren tropischen Troposphäre gekennzeichnet. Außerdem ist eine starke Ozonabnahme in der extratropischen Tropopausenregion beider Hemisphären zu verzeichnen (siehe Abbildung 6.1). Die Ozonabnahme in der Tropopausenregion lässt sich durch die Hebung der Tropopause im 2*CO₂-Experiment erklären (siehe Abbildung 6.6 a). So ist die Lage der Tropopause im Verdoppelungsexperiment relativ zum Referenzexperiment höher und in diesem relativ schmalen Höhenbereich wird im Referenzexperiment stratosphärisches Ozon und im CO₂-Verdoppelungsexperiment troposphärisches Ozon simuliert. In der mittleren Troposphäre werden die Ozonkonzentrationen durch den NO_x- und den HO_x-Zyklus bestimmt. Eine Zunahme der NO_x-Konzentrationen führt zu höherer Ozonproduktion (siehe Reaktion 2.22 bzw. 2.29). Die Änderung des Zonalmittels des troposphärischen NO_y-Mischungsverhältnisses aufgrund einer CO₂-Verdoppelung in Abbildung 6.3 a lässt sich als Folge von verändertem Auswaschen des Reservoirgases HNO₃ und von veränderten Blitz-NO_x-Emissionen in einen wärmeren Klima erklären. Gedämpftes Auswaschen von HNO₃ ist in den Subtropen und verstärktes Auswaschen von HNO₃ in den Extratropen zu verzeichnen, was zu höheren

⁶Die HO_x-Zunahme in der unteren Stratosphäre hingegen kann nicht auf geändertes Tropical-upwelling zurückgeführt werden, da die HO_x-Konzentrationen in der tropischen Troposphäre gegenüber der unteren tropischen Stratosphäre nur leicht erhöht sind. Wahrscheinlich ist hier die durch das verstärkte Tropical-upwelling verursachte ClO_x-Abnahme für die HO_x-Abnahme verantwortlich (Kopplung von HO_x- und ClO_x-Zyklus über die Reaktion HO₂+ClO→HOCl+O₂).

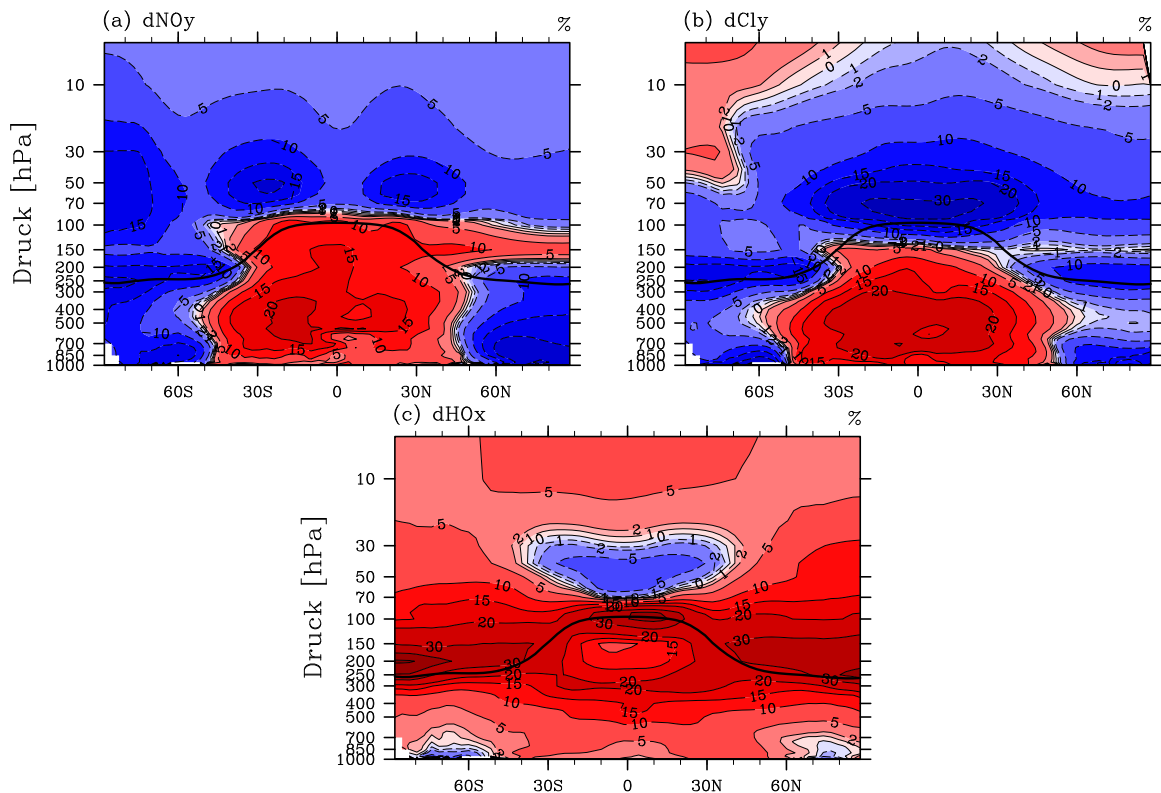


Abbildung 6.3: Zonalmittel (Jahresmittel) der relative Änderung des (a) NO_y-Mischungsverhältnisses (b) Cl_y-Mischungsverhältnisses und (c) HO_x-Mischungsverhältnisses als Folge einer CO₂-Verdoppelung (in % Volumemischungsverhältnis im Bezug auf ungestörte Referenzsimulation).

bzw. niedrigeren NO_y-Konzentrationen führt (nicht durch Abbildung gezeigt). Für die Zunahme von NO_y-Konzentrationen in den inneren Tropen sind die verstärkten Emissionen von Blitz-NO_x zwischen 30°S und 30°N in der Troposphäre verantwortlich (nicht durch Abbildung gezeigt). Abgeschwächte Blitz-NO_x-Emissionen in den hohen Breiten tragen hingegen, neben dem verstärkten HNO₃-Auswaschen zur Abnahme der NO_y-Konzentration in diesem Bereich bei.

Auch der Ozonverlust über den HO_x-Zyklus bei niedrigem NO_x-Hintergrund (siehe Reaktionen 2.33 und 2.34) kann die Ozonkonzentration der Troposphäre beeinflussen. Abbildung 6.3 c zeigt, dass fast in der gesamten Troposphäre das HO_x-Mischungsverhältnis, infolge der in einem wärmeren Klima stattfindenden Wasserdampfzunahme, über die Reaktion 2.36 zunimmt, was zu verstärktem Ozonverlust führt (siehe z.B. Johnson et al., 1999). Die Ozonproduktion über den NO_x-Zyklus dominiert jedoch in fast der gesamten Troposphäre den positiven Verlust über den HO_x-Zyklus. Darum weist der NO_y-Response in der Troposphäre eine sehr ähnliche meridionale Struktur zum Ozonresponse auf. Bei der Ozonabnahme am Boden in den Tropen hingegen ist eine Dominanz des HO_x-Zyklus zu vermuten.

Der Vergleich mit Grewe et al. (2001b), die unter anderem den Effekt von Temperatur und Wasserdampf auf die Zusammensetzung der Atmosphäre mit einem interaktiven Klima-

Chemie-Modell untersuchten, indem die SST erhöht wurde, zeigt ähnliche Ergebnisse im Ozonänderungsmuster wie die vorliegende Arbeit: Für die relative Änderung des Mischungsverhältnisses von Ozon in den Monaten Januar und Juli stimmen die zonal gemittelten Responsesmuster in Troposphäre und Stratosphäre relativ gut überein und auch die Asymmetrie der saisonalen Variabilität wird von beiden Modellen ähnlich simuliert (nicht in Abbildung gezeigt). Da für die Troposphäre eine SST-Erhöhung (Grewe et al., 2001b) und eine CO₂-Erhöhung mit interaktivem Ozon (diese Arbeit) nahezu die gleichen klimatischen Konsequenzen haben, ist die geschilderte Ähnlichkeit zu erwarten. Die Ergebnisse der unterschiedlichen Modellkonfigurationen sind hier vollkommen konsistent.

6.1.2 Methan und Lachgas

Die Änderung des Methanmischungsverhältnisses im CO₂-Verdoppelungsexperiment mit gekoppelter Chemie relativ zum Referenzexperiment ist hauptsächlich durch eine positive Methanänderung um wenige Prozent in der Stratosphäre beschrieben, die mit der Höhe zunimmt und durch eine besonders geringere Zunahme in der tropischen Stratosphäre gekennzeichnet ist (siehe Abbildung 6.4 a). Dieses Änderungsmuster lässt sich durch die starke Temperaturabhängigkeit des Methanabbaus über die Methanoxidation (Reaktion 2.16) erklären (z.B. Stevenson et al., 2005; Isaksen et al., 2009). Eine kältere Stratosphäre schwächt den Methanabbau ab, was höhere Methankonzentrationen verursacht. Des Weiteren ist ein Abbau von Methan über Chlor möglich ($\text{CH}_4 + \text{Cl} \rightarrow \text{HCl} + \text{CH}_3\text{O}_2$). Die Cl_y-Abnahme in der Stratosphäre (Abbildung 6.3 b) führt somit zusätzlich zu einer höheren Methankonzentration relativ zum Referenzexperiment. Geänderte chemische Reaktionen in einer kälteren Stratosphäre dominieren das Methanänderungsmuster, aber auch die Intensivierung im Tropical-upwelling und der damit verbundene verstärkte Eintrag von troposphärischer Luft in die tropische Stratosphäre modifiziert dieses Muster. Da die troposphärische Luft methanrei-

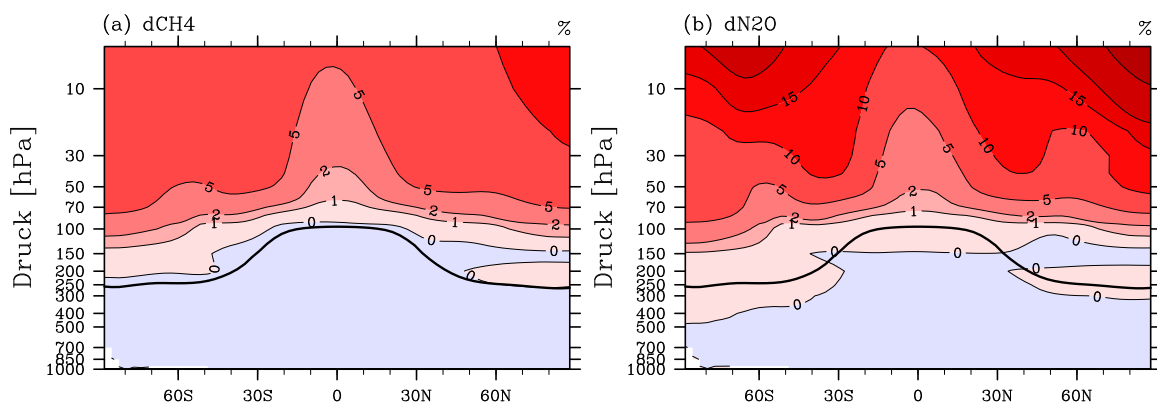


Abbildung 6.4: Zonalmittel (Jahresmittel) (a) der relativen Änderung des Methanmischungsverhältnisses (b) der relativen Änderung des Lachgasmischungsverhältnisses, auf Grund einer CO₂-Verdoppelung (in % Volumenmischungsverhältnis im Bezug auf (ungestörte) Referenzsimulation). In Abbildung A1 (Anhang) sind die dargestellten Änderungsmuster mit einem Signifikanztest hinterlegt.

cher ist, führt letztere zwar ebenfalls zu einer Zunahme, die aber geringer ausfällt als die chemisch induzierte Zunahme in der übrigen Stratosphäre.

Die relative Änderung des Lachgasmischungsverhältnisses im 2^*CO_2 -Experiment mit gekoppelter Chemie (siehe Abbildung 6.4 b) weist eine ähnliche Struktur wie das Methanänderungsmuster auf, es ist auch hauptsächlich durch temperaturabhängige chemische Reaktionen bestimmt. Bei kälterer Stratosphärentemperatur ist eine abgeschwächte Photolyse von Lachgas zu verzeichnen, was zu höheren Lachgaskonzentrationen führt. Auch hier ist das Änderungsmuster durch das verstärkte Tropical-upwelling modifiziert, mit einem ähnlichen Effekt auf das Änderungsmuster.

In der Troposphäre ist kaum eine Änderung von Methan und Lachgas infolge einer CO_2 -Verdoppelung zu verzeichnen. Der Grund hierfür ist vor allem, dass die Emissionen am Boden im Modell vorgeschrieben werden. Somit ist die Rückkopplung dieser strahlungsaktiven Gase auf eine Klimaerwärmung stark eingeschränkt.

6.2 Response und Responseänderung ausgewählter physikalischer Parameter

6.2.1 Temperatur

Abbildung 6.5 zeigt das Jahresmittel des zonal gemittelten Temperaturresponses für (a) das 2^*CO_2 -Experiment ohne Chemie, (b) das 2^*CO_2 -Experiment mit Chemie und (c) die Differenz zwischen dem Temperaturresponse in der 2^*CO_2 -Simulation mit und ohne gekoppelter Chemie, also die Temperaturresponseänderung infolge chemischer Rückkopplungsprozesse. Zusätzlich ist in Abbildung 6.5 d das Responseänderungsmuster mit einem Signifikanztest hinterlegt.⁷ Dargestellt ist jeweils der absolute Response der Temperatur in K. Der Abbildung ist zu entnehmen, dass sowohl für das Experiment mit Chemie als auch für das Experiment ohne Chemie das typische symmetrische Klimasignal einer CO_2 -Erhöhung mit einer Temperaturerwärmung in der Troposphäre und einer Abkühlung in der Stratosphäre simuliert wird. Die positive Temperaturabweichung in der Troposphäre ist sehr einheitlich aufgrund der guten Durchmischung mit etwas größerem Response in den nördlichen Extratropen. Beide Experimente zeigen in der Troposphäre sowohl hinsichtlich der Struktur als auch hinsichtlich der Größe eine sehr gute Übereinstimmung. Das zeigt sich auch in der geringen, meist nicht signifikanten Responseänderung der troposphärischen Temperatur bei Vorliegen einer interaktiv gekoppelten Chemie (siehe Abbildung 6.5 c und d). Das Globalmittel des Bodentemperaturresponses, das die Änderung der troposphärischen Temperatur

⁷ Die an einigen Stellen als statistisch signifikant ausgewiesenen Bereiche um die Nulllinie (z.B. 30°S , 50 hPa) entstehen infolge von Interpolationsinkonsistenzen beim Plotten von Differenz- und Signifikanzwerten. Anhand der dem Plotprogramm zugrundeliegenden Daten wurde sichergestellt, dass die Ergebnisse des Signifikanztestes korrekt sind. Irreführend ist nur die graphische Darstellung in den genannten Ausnahmefällen.

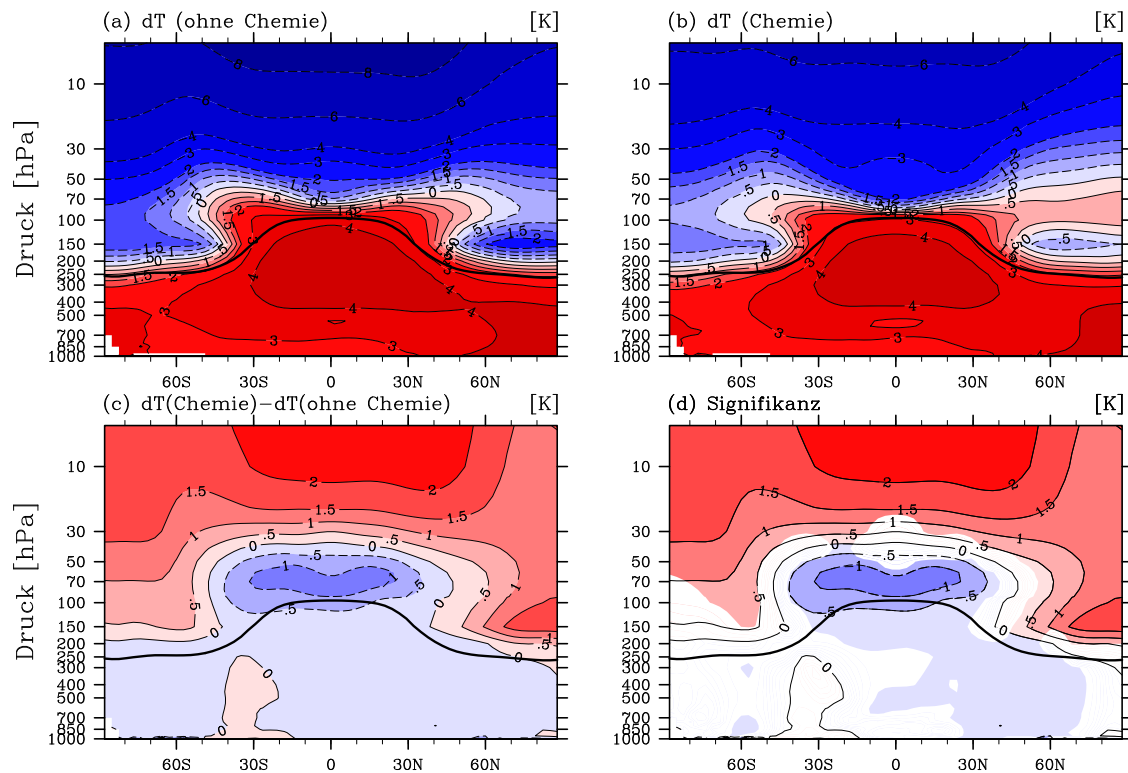


Abbildung 6.5: Zonalmittel (Jahresmittel) des Gleichgewichtstemperaturresponses (in K) für eine Verdoppelung der CO₂-Konzentration (a) im Experiment ohne Chemie, (b) im Experiment mit interaktiver Chemie. Abbildung (c) zeigt die Differenz zwischen den zwei CO₂-induzierten Änderungsmustern. Der Temperaturresponse ohne Chemie wird vom Temperaturresponse mit gekoppelter Chemie subtrahiert und wird in (d) mit einem Signifikanztest hinterlegt. Weiße Flächen markieren Gebiete in denen die Unterschiede auf dem 95%-Niveau nicht signifikant sind.

kontrolliert, ist im Experiment mit gekoppelter Chemie mit 2.81 K nur geringfügig gegenüber dem Experiment ohne Chemie (2.91 K) gedämpft.

Die stratosphärische Temperaturänderung infolge einer CO₂-Verdoppelung ist negativ und wird mit zunehmender Höhe stärker. In der Stratosphäre sind aufgrund der geringeren Absorbermasse von CO₂ und Wasserdampf, die einschlägigen Absorptionsbanden im langwelligeren Spektralbereich nicht vollständig gesättigt, so dass eine Zunahme von CO₂ die Emissivität erhöht. Somit nimmt als Reaktion auf die CO₂-Erhöhung die Abkühlung der Stratosphäre mit der Höhe zu (z.B. Clough et al., 1992). Im Gegensatz zum troposphärischen Temperaturresponse weist der stratosphärische Temperaturresponse zwischen den beiden Experimenten große Unterschiede auf (siehe Abbildung 6.5 c und d). Die Änderung des Temperaturresponses aufgrund chemischer Rückkopplungen zeigt eine starke und signifikante Abnahme in der unteren tropischen Stratosphäre von über 1 K. Diese Abnahme ist hauptsächlich durch eine strahlungsbedingte Abkühlung (verringerte kurzwellige Absorption) durch die in Abbildung 6.1 gezeigte Ozonabnahme zu erklären. Die mittlere tropische Stratosphäre zeigt eine positive Abweichung in der Temperatur aufgrund interaktiver Chemie von über 2 K. Diese ist verursacht durch die Temperaturzunahme überhalb der

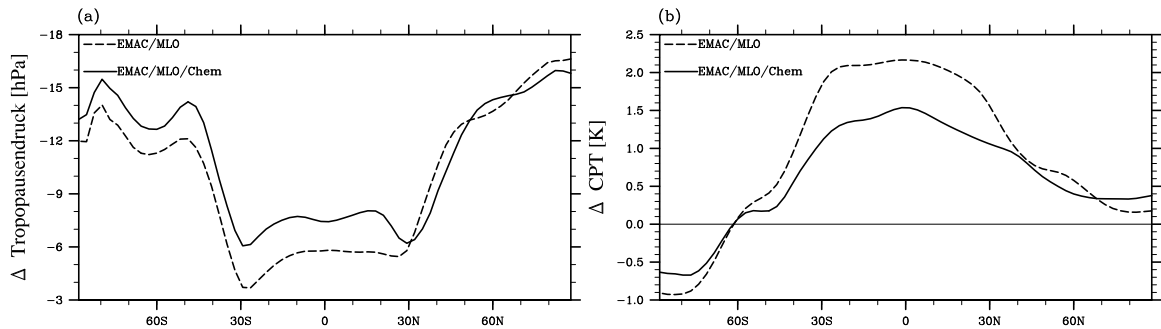


Abbildung 6.6: Zonaler Response (a) der Tropopausenhöhe und (b) der Coldpoint-Temperatur in Folge einer CO_2 -Verdoppelung. Der Response mit interaktiver Chemie (durchgezogene Linie) und der Response ohne Chemie (gestrichelte Linie) sind in den Bildern gegenübergestellt.

Ozonabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre (langwellige Erwärmung) sowie durch die Ozonzunahme in der mittleren Stratosphäre (kurzwellige Erwärmung). Die stratosphärischen Extratropen zeigen eine signifikante Temperaturerwärmung, welche strahlungsbedingt durch die dort stattfindende Ozonzunahme und zu erklären ist. So lässt sich zusammenfassen, dass im CO_2 -Experiment mit interaktiver Chemie trotz der schwachen Änderung des Bodentemperaturresponses (0.1 K), eine signifikante Modifikation des stratosphärischen Temperaturresponses eintritt.

In Abbildung 6.6 a ist die Änderung des Tropopausendruckes (in hPa) infolge einer CO_2 -Verdoppelung für das Experiment mit und ohne Chemie im zonalen Jahresmittelwert dargestellt. Beide Experimente zeigen eine Anhebung der Tropopause in allen geographischen Breiten (in Übereinstimmung mit den Studien von (z.B. Santer et al., 2003; Sausen und Santer, 2003). Die maximale Änderung ist in den Extratropen und die minimale Änderung in den Tropen und Subtropen zu verzeichnen. Die Erhöhung der zonal gemittelten Tropopause ist im Experiment mit Chemie für fast alle geographischen Breiten größer. Das gleiche gilt für den Druck am vertikalen Temperaturminimum (CPT, siehe Abschnitt 2.4). Gleichzeitig erwärmt sich aber die Coldpoint-Temperatur im Experiment mit Chemie vor allem in den Tropen schwächer als im Experiment ohne Chemie (siehe Abbildung 6.6 b). Ursache ist das geänderte stratosphärische tropische Temperaturprofil im Experiment ohne und mit Chemie (vergleiche Abbildung 6.5 a und b).

6.2.2 Wasserdampf

Die Änderung des Temperaturresponses lässt erwarten, dass auch die Rückkopplung von troposphärischem und stratosphärischem Wasserdampf durch die chemischen Rückkopplungseffekte beeinflusst werden. Abbildungen 6.7 a-c fassen die Gleichgewichtänderung des Wasserdampfes im 2^*CO_2 -Experiment mit und ohne Chemie, sowie die daraus resultierende Responseänderung aufgrund interaktiver Chemie in Form von zonalen Jahresmitteln zusammen. Um den Effekt des stratosphärischen Wasserdampfes zu betonen werden die relative

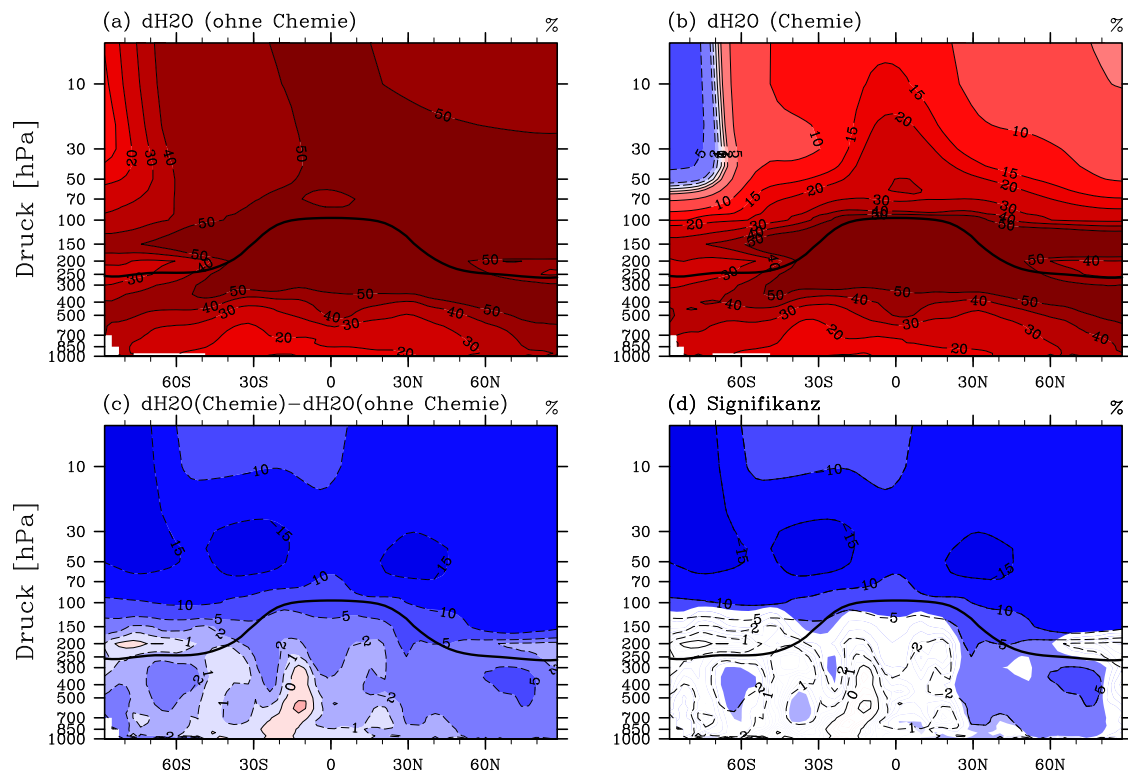


Abbildung 6.7: Zonalmittel (Jahresmittel) des relativen Wasserdampfresponses im Gleichgewicht (in % Volumenmischungsverhältnis) für eine Verdoppelung der CO₂-Konzentration (a) im Experiment ohne Chemie und (b) im Experiment mit interaktiver Chemie, jeweils relativ zum Referenzexperiment mit Chemie. Abbildung (c) zeigt die Differenz zwischen den zwei CO₂-induzierten Änderungsmuster. Es wird der Wasserdampfresponse ohne Chemie vom jenem mit Chemie subtrahiert und in Relation zum Referenzexperiment mit Chemie gestellt. In (d) wird diese Differenz mit einem Signifikanztest hinterlegt. Weiße Flächen markieren Gebiete in denen die Unterschiede nicht signifikant auf dem 95%-Niveau sind.

Änderungen des Wasserdampf-mischungsverhältnisses in % relativ zum jeweiligen Referenzexperiment dargestellt. Die Responseänderung des Wasserdampf-mischungsverhältnisses ist in % relativ zum Referenzexperiment mit Chemie angegeben. Abbildung d zeigt nochmals das Responseänderungsmuster, zusätzlich mit einem Signifikanztest hinterlegt.

Mit der Temperatur erhöht sich nach der Clausius-Claperon-Gleichung der Sättigungsdampfdruck. Daher ist der Response des Wasserdampfes stark an den Temperaturresponse gebunden und der troposphärische Wasserdampf nimmt in einem wärmeren Klima, also in beiden CO₂-Erhöhungsexperimenten, zu. Der troposphärische Wasserdampfresponse zeigt nur geringe, gemäß dem Student-t-Test statistisch meist nicht signifikante, Unterschiede zwischen dem Modell mit und ohne interaktive Chemie (Abbildung 6.7 c und d).

Mit Ausnahme der südlichen polaren Stratosphäre im Experiment mit Chemie, nimmt auch der stratosphärische Wasserdampfgehalt in beiden Erwärmungsexperimenten stark zu (Abbildung 6.7 a und b). Die speziellen Änderungen in der Stratosphäre südlich von 65°S können

auf die in einer kälteren Stratosphäre bedingte verstärkte PSC-Bildung zurückgeführt werden. Generell ist der Wasserdampfeintrag in die Stratosphäre stark an den Transport von troposphärischer Luft durch die tropische Tropopause gebunden. Der Wasserdampfeintrag in die Stratosphäre wird durch die Dehydrierung der Luft beim Transport durch das vertikale Temperaturminimum bestimmt. Der Wasserdampfeintrag von der Troposphäre in die Stratosphäre ist im Erwärmungsexperiment größer infolge des erhöhten Sättigungsdampfdruck an der tropischen Tropopause (bzw. Coldpoint), selbst bei gleichbleibender Dynamik. So zeigt die (tropische) CPT, die ein Maß für den Wasserdampfeintrag in die Stratosphäre darstellt, eine Erhöhung in beiden Experimenten (Abbildung 6.6 b). Da sich außerdem die horizontale Ausdehnung des aufsteigenden Astes der Brewer-Dobson-Zirkulation in den Tropen im 2^*CO_2 -Experiment intensiviert, kommt es zusätzlich zu verstärktem Wasserdampfeintrag in die Stratosphäre.

Abbildungen 6.7 c und d zeigen, dass sich der stratosphärische Wasserdampf im Experiment mit chemischen Rückkopplungen stark und signifikant vom Experiment ohne chemische Rückkopplungen unterscheidet. Er ist im Experiment mit Chemie um bis zu 15% geringer als im Experiment ohne Chemie. Dies lässt sich dadurch erklären, dass sich die tropische CPT im Experiment mit interaktiver Chemie etwas weniger erwärmt (siehe Abbildung 6.6 b) und dort eine schwächere Dehydrierung an der Tropopause stattfindet, was zu einem geringeren stratosphärischen Wasserdampfgehalt führt.

Zusätzlich ist die Methanoxidation im Experiment mit Chemie eine In-situ-Quelle für den Wasserdampf in der Stratosphäre (siehe Reaktion 2.16), sie gewinnt mit zunehmender Höhe an Bedeutung. Sie ist eine zusätzliche Quelle von Wasserdampf im Experiment mit Chemie, die zu einer positiven Änderung des Wasserdampfes aufgrund interaktiver Chemie führt. Die Wasserdampfproduktion durch die Methanoxidation wird jedoch von der negativen Änderung über die CPT dominiert (siehe Abbildung 6.7 c).

6.3 Chemisch bedingte Strahlungsrückkopplungen

6.3.1 Strahlungsrückkopplung von Ozon

Ozon verursacht im kurzwelligen wie im langwelligen einen Strahlungsantrieb. Einerseits absorbiert Ozon kurzwellige Strahlung, andererseits wirkt Ozon als Treibhausgas, indem es langwellige Strahlung absorbiert und bei seiner lokalen Temperatur reemittiert. Bei einer troposphärischen Ozonzunahme kommt es zu einem positiven langwelligen Strahlungsantrieb an der Tropopause, wobei der instantane, aufgrund der Abkühlung der Stratosphäre, größer als der stratosphären-adjustierte Strahlungsantrieb ist. Auch der kurzwellige Strahlungsantrieb ist aufgrund der Absorption in der Troposphäre positiv, so dass der Netto-Strahlungsantrieb sich aus der Summe der absoluten Beiträge der beiden Komponenten ergibt. Eine stratosphärische Ozonzunahme führt hingegen zu einem negativen kurzwelligen und positiven langwelligen instantanen Strahlungsantrieb an der Tropopause, da in der Stratosphäre kurzwellige Strahlung absorbiert und langwellige Strahlung absorbiert und reemittiert wird. Der

Tabelle 6.1: Strahlungsrückkopplungsparameter α von O₃, CH₄, N₂O und H₂O in Wm⁻²K⁻¹ für eine CO₂-Verdoppelungssimulation mit und ohne interaktive Chemie, bezogen auf die entsprechende Bodentemperaturänderung des jeweiligen Referenzexperimentes. Die letzte Spalte zeigt die Änderung der Rückkopplungsparameter aufgrund interaktiver Chemie.

	$2^*CO2_{MLO,uncoup}$ [Wm ⁻² K ⁻¹]	$2^*CO2_{MLO,coup}$ [Wm ⁻² K ⁻¹]	Differenz [Wm ⁻² K ⁻¹]
$\alpha(O_3)$	0	-0.022	-0.022
$\alpha(O_3, \text{tropo})$	0	0.008	+0.008
$\alpha(O_3, \text{strato})$	0	-0.031	-0.031
$\alpha(CH_4)$	0	≈ 0	≈ 0
$\alpha(N_2O)$	0	≈ 0	≈ 0
$\alpha(H_2O)$	2.549	2.521	-0.027
$\alpha(H_2O, \text{tropo})$	2.323	2.330	+0.007
$\alpha(H_2O, \text{strato})$	0.233	0.199	-0.034

instantane Nettostrahlungsantrieb ist dann negativ. Beim stratosphären-adjustierten Strahlungsantrieb kommt es durch die Erwärmung der Stratosphäre zu einer Erhöhung des langwelligen Strahlungsflusses an der Tropopause, dieser dominiert im Falle von Ozonänderungen in der mittleren Stratosphäre den kurzwelligen negativen Strahlungsantrieb, und führt zu einem positiven stratosphären-adjustierten Nettostrahlungsantrieb (Hansen et al., 1997). Dies wurde in der Arbeit von Stuber (2001) z.B. für eine Ozonstörung in der unteren Stratosphäre gezeigt.

Für das oben beschriebene Ozonänderungsmuster (Abbildung 6.1) eines CO₂-Verdoppelungsexperimentes mit interaktiver Chemie ist der induzierte stratosphären-adjustierte Nettostrahlungsantrieb, also die chemische Rückkopplung über Ozon, negativ bei einem Wert von -0.061 Wm⁻². Somit ergibt sich bei einer Änderung der globalen Bodentemperatur von 2.81 K ein Rückkopplungsparameter von -0.022 Wm⁻²K⁻¹ (siehe Tabelle 6.1). Abbildung 6.9 zeigt den zonalen Verlauf der durch die Ozonrückkopplung hervorgerufenen kurzwelligen, langwelligen sowie der Nettostrahlungsrückkopplung an der Tropopause. Der Verlauf der kurzwelligen Strahlungsrückkopplung wird durch die Änderung der Ozongesamtsäule (siehe Abbildung 6.8) und durch den in den polaren Breiten abnehmenden mittleren Sonnenstand bestimmt. Er ist durchgehend negativ, mit einem globalen Mittelwert von -0.105 Wm⁻² und hat in den Tropen seine kleinsten Absolutwerte. Wie Abbildung 6.8 zu entnehmen ist, ändert sich die Gesamtozonsäule in den inneren Tropen in einem wärmeren Klima nur vernachlässigbar, da sich Ozonabnahme und Ozonzunahme entlang des vertikalen Profils kompensieren. Dies ist nicht ganz konsistent mit einer geringen positiven Strahlungsrückkopplung am Oberrand der Atmosphäre im solaren Spektralbereich (nicht durch Abbildung gezeigt). Das ist ein grundsätzlicher Widerspruch zu der Vorstellung, dass das Vorzeichen der kurzwelligen Ozonstrahlungsrückkopplung nur durch die Änderung des Gesamtozons bestimmt wird. Wie in Abbildung 6.10 zu erkennen weist das Ozonänderungsprofil in den Tropen jedoch mehrere Wechsel zwischen Ozonzunahme und -abnahme auf. Es ist vorstellbar, dass die relative Lage dieser Ozonänderungen zur Verteilung der anderen solaren Absorber (Wolken, Wasserdampf) dazu führt, dass eine Verschiebung von Ozon innerhalb

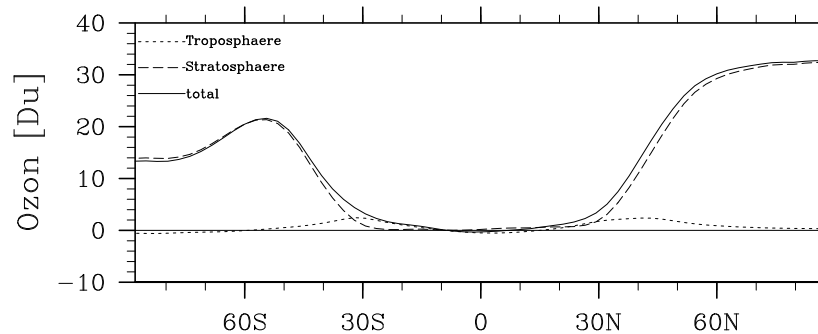


Abbildung 6.8: Änderung der Ozonsäule infolge einer CO_2 -Verdoppelung in einer Simulation mit interaktiver Chemie. Gezeigt sind Ozongesamtsäule (durchgezogene Linie), troposphärische Ozonsäule (gepunktete Linie) und stratosphärische Ozonsäule (gestrichelte Linie) in DU. Änderungen von troposphärischer und stratosphärischer Ozonsäule wurden im Bezug auf Referenztropopause berechnet.

der Säule (z.B. von der unteren Stratosphäre in die obere Troposphäre) trotz vollständiger Kompensation in der Gesamt Ozonmasse ein Restsignal in der Strahlungsflussänderung hinterlässt. Da für die Diagnose nur die Änderung des Gesamtstrahlungsflusses, aber nicht die Änderungen der aufwärts und abwärts fließenden Komponenten, zur Verfügung stand, kann diese Frage nicht vollständig beantwortet werden.

Die langwellige Strahlungsrückkopplung an der Tropopause ist mit 0.039 Wm^{-2} positiv, sie ist sowohl durch das Ozonänderungsmuster als auch durch die von der Ozonänderung hervorgerufenen Temperaturänderung bestimmt. Der stärkste positive langwellige Strahlungsantrieb tritt in den hohen Breiten (etwa 60°N und 60°S) auf wegen der dortigen Ozonzunahme in der mittleren (in der Nordhemisphäre auch in der unteren) Stratosphäre. In den Tropen ist der langwellige Strahlungsantrieb dagegen negativ. Dies liegt wieder an der Ozonabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre, welche die thermische Ausstrahlung in den Weltraum verstärkt. Da Ozonänderungen nahe der Tropopause den stärksten Strahlungseffekt zur Folge haben, wegen dem großen Temperaturunterschied zwischen emittierender Schicht und dem Erdboden (z.B. Lacis et al., 1990), ist der langwellige Strahlungsantrieb hier sogar trotz unveränderter Ozonsäule negativ. Die zonale Nettostrahlungsrückkopplung von Ozon zeigt als Summe der langwelligen und kurzwelligen Strahlungsrückkopplung einen differenzierten zonalen Verlauf. Sie erreicht ihr Minimum in den Tropen und ihre maximalen Werte in den nördlichen Extratropen, wobei nur in den nördlichen hohen Breiten positive Werte auftreten.

Abbildungen 6.9 b und 6.9 c beschreiben nun den zonalen Verlauf der Strahlungsrückkopplung von stratosphärischem und troposphärischem Ozon einzeln. Aus diesen Abbildungen geht hervor, dass die chemische Rückkopplung über stratosphärisches Ozon mit -0.087 Wm^{-2} den dominierenden Teil zur negativen Strahlungsrückkopplung des Gesamt Ozons ausmacht. Die Rückkopplung über stratosphärisches Ozon wird wiederum dominiert durch die Ozonabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre, da, wie bereits erwähnt, Ozonänderungen in der unteren Stratosphäre wichtig für die Stärke und das Vorzeichen des Strahlungsan-

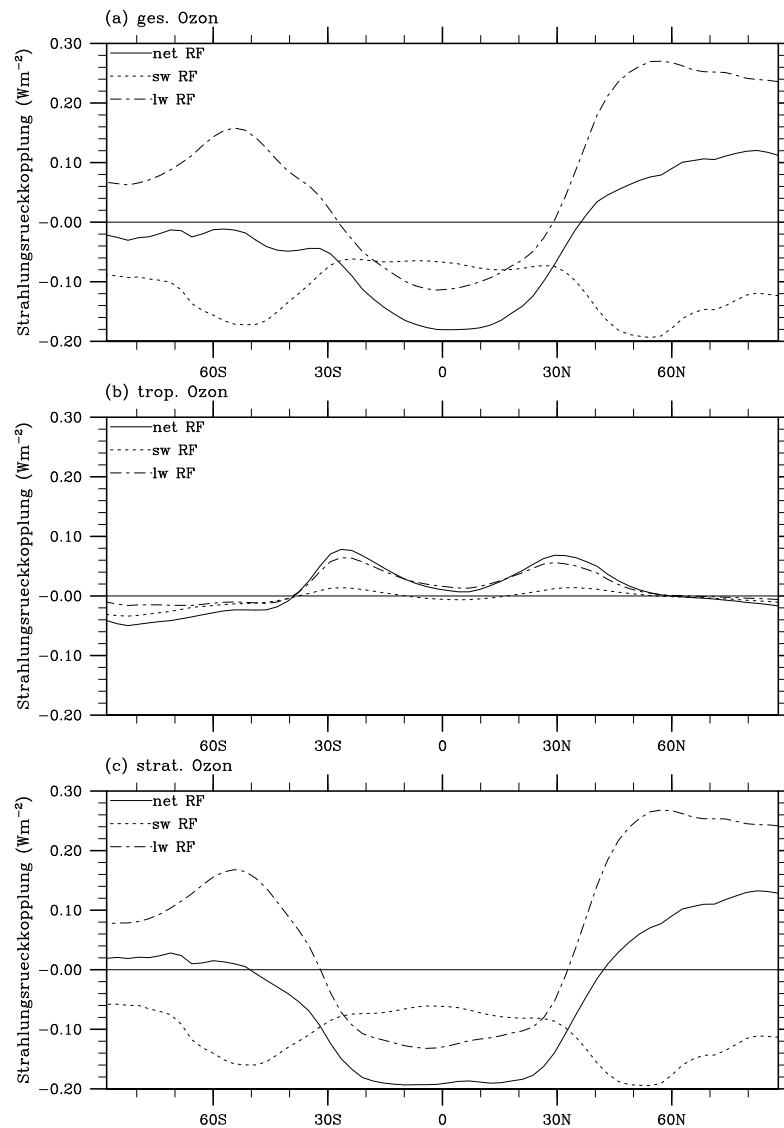


Abbildung 6.9: Zonalmittel der stratosphären-adjustierten Strahlungsrückkopplung an der Tropopause (kurzwellige, langwellige und netto Komponente) für (a) Ozon (b) troposphärisches Ozon und (c) stratosphärisches Ozon infolge einer CO_2 -Verdoppelung im Experiment mit interaktiver Chemie.

triebs sind. Die chemische Rückkopplung über troposphärisches Ozon ist positiv (0.019 Wm^{-2}) und vom Betrag deutlich kleiner als die Rückkopplung über stratosphärisches Ozon (-0.087 Wm^{-2}). Der zonale Verlauf der gemittelten Nettostrahlungsrückkopplung von troposphärischem Ozon ist gekennzeichnet durch positive Maximalwerte in den mittleren Breiten und relative kleine positive Werte in den Tropen; negative Werte finden sich in den hohen Breiten (siehe Abbildung 6.9 b). Der zonale Verlauf der Nettostrahlungsrückkopplung von troposphärischem Ozon wird hauptsächlich durch den zonalen Verlauf der langwelligen Rückkopplungskomponente bestimmt, welche wiederum stark von Wolken und Wasserdampf beeinflusst ist (z.B. Gauss et al., 2006; Cionni et al., 2011).

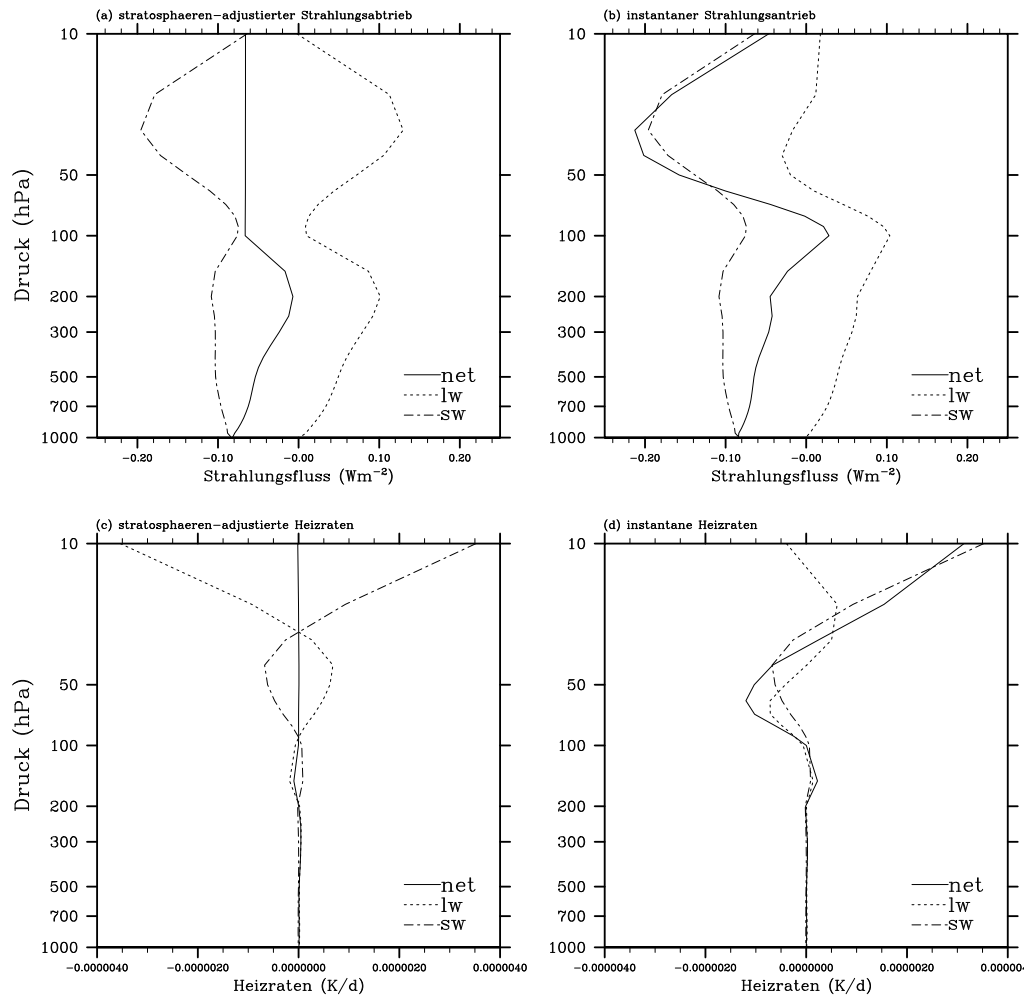


Abbildung 6.10: Profil der global gemittelten (a) stratosphären-adjustierten und (b) instantanen Ozonstrahlungsrückkopplung in Wm^{-2} (oben) sowie Profil der global gemittelten (c) stratosphären-adjustierten und (d) instantanen Ozonstrahlungserwärmungsrate in K/Tag (unten), aufgrund einer CO_2 -Verdoppelung.

Abbildung 6.10 a-d illustriert das vertikale Profil der geänderten global gemittelten langwelligen, kurzwelligen und Nettostrahlungsflüsse und Erwärmungsraten durch Ozon im $2 \times \text{CO}_2$ -Experiment, sowohl für den stratosphären-adjustierten und den instantanen Fall. Die Strahlungserwärmungsraten ergeben sich aus der Divergenz der Strahlungsflüsse. Abbildung 6.10 a ist zu entnehmen, dass die Nettostrahlungsflussänderung in der Stratosphäre aufgrund des Stratosphären-Adjustments konstant wird. Gemäß dieser Definition ist der Strahlungsantrieb (bzw. in diesem Fall die Strahlungsrückkopplung) an der Tropopause und am Oberrand der Atmosphäre gleich. Die instantane Nettorückkopplung über Ozon an der Tropopause ist mit -0.040 Wm^{-2} betragsmäßig etwas kleiner als der stratosphären-adjustierte Wert von -0.061 Wm^{-2} . Dies lässt sich durch die Abkühlung der unteren tropischen Stratosphäre und die damit verbundene Minimierung der langwelligen Ausstrahlung erklären, wie es die instantanen Erwärmungsänderungen (Abbildung 6.10 d) noch deutlich zeigen. Im solaren Teil des Spektrums verursacht die Ozonabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre gerin-

gere und die Ozonzunahme in der mittleren Stratosphäre verstärkte Absorption durch Ozon (Abbildung 6.10 c und d). Hier sind somit negative Heizraten in der unteren Stratosphäre und positive Heizraten in der mittleren Stratosphäre zu finden. Im langwelligen Teil des Spektrums zeigen die instantanen Heizraten eine positive Temperaturtendenz oberhalb und eine negative Temperaturtendenz unterhalb der maximalen Ozonabnahme in 70 hPa. Die in der mittleren Stratosphäre signifikante Ozonzunahme bewirkt dann wiederum eine negative langwellige Temperaturtendenz in der mittleren Stratosphäre.

6.3.2 Strahlungsrückkopplung von Methan und Lachgas

Die in Abbildung 6.4 gezeigten Methan- und Lachgasänderungsmuster infolge einer CO₂-Verdoppelung verursachen eine Nettostrahlungsantrieb von 0.0011 Wm⁻² (Methan) und 0.0017 Wm⁻² (Lachgas). Die Strahlungsrückkopplungen über Methan und Lachgas sind also im Vergleich zur Ozonrückkopplung sehr klein. Sowohl Methan, als auch Lachgas haben keinen kurzwelligen Beitrag im Strahlungsantrieb. Abbildung 6.11 illustriert den zonalen Verlauf der langwelligen bzw. der Nettostrahlungsrückkopplung, welcher hauptsächlich durch die jeweiligen stratosphärischen Änderungsmuster bestimmt ist. Das Zonalprofil der stratosphärischen Konzentrationsänderungen aus Abbildung 6.4 ist problemlos wiederzuerkennen. Da sich Methan und Lachgas in der Troposphäre durch die festgeschriebenen Bodenkonzentrationen fast nicht ändern, stellt sich natürlich die Frage inwieweit diese berechneten Strahlungsrückkopplungen bewertbar und vergleichbar mit der Ozonrückkopplung sind.

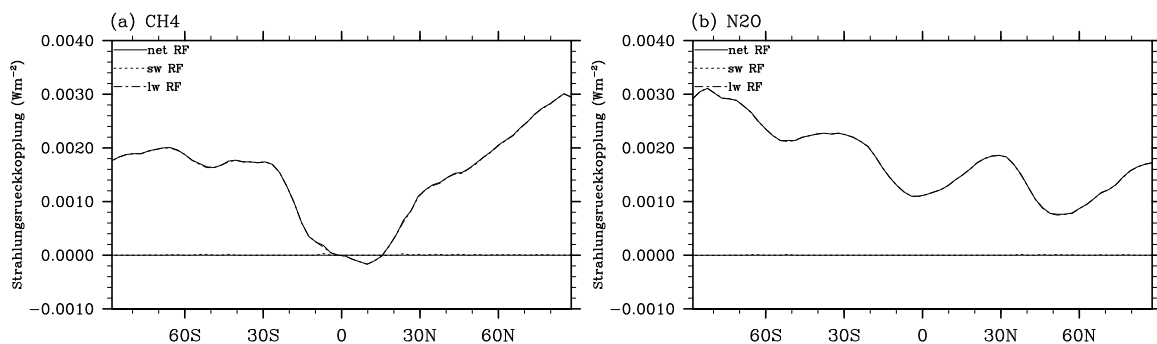


Abbildung 6.11: Zonalmittel der stratosphären-adjustierten Strahlungsrückkopplung an der Tropopause (a) für Methan und (b) für Lachgas infolge einer CO₂-Verdoppelung.

6.3.3 Strahlungsrückkopplungsänderung von Wasserdampf

Allgemein ist Wasserdampf ein sehr strahlungswirksames Spurengas, das besonders im Langwelligen emittiert und absorbiert. Der troposphärische Wasserdampf hat eine starke Klima-

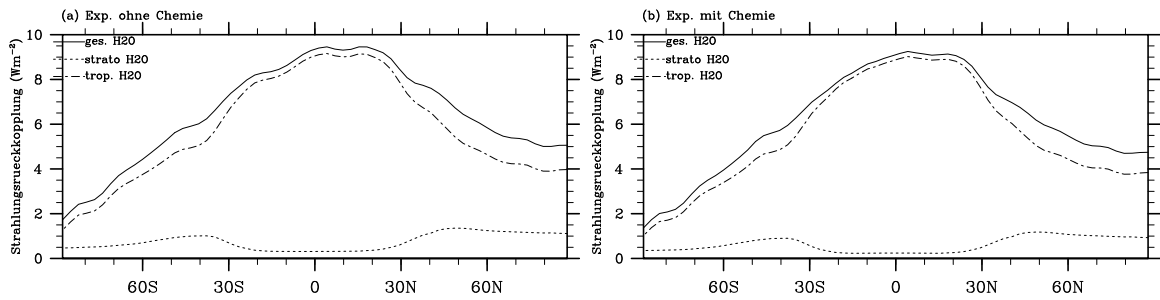


Abbildung 6.12: Zonalmittel der stratosphären-adjustierten Wasserdampfückkopplung an der Tropopause im CO_2 -Verdoppelungsexperiment (a) ohne interaktive Chemie und (b) mit interaktiver Chemie. Gezeigt ist die Strahlungsrückkopplung über den gesamten (durchgezogene Linie), den stratosphärischen (gepunktete Linie) und den troposphärischen Wasserdampfes (gestichelte Linie).

wirkung, aber auch eine Änderung des stratosphärischen Wasserdampfes liefert einen signifikanten Beitrag zum Strahlungsantrieb (Solomon et al., 2007). Da physikalische Rückkopplungen eng an chemische Rückkopplungen geknüpft sein können (siehe Abschnitt 2.4), ist es wichtig physikalische Rückkopplungen im Experiment mit und ohne gekoppelte Chemie untereinander qualitativ und quantitativ zu vergleichen.

Wie Abbildung 6.7 c zu entnehmen war, ist eine unterschiedlich starke Wasserdampfresponseänderung im CO_2 -Verdoppelungsexperiment mit und ohne Chemie zu verzeichnen. Um die Rückkopplung der beiden Experimente quantitativ zu vergleichen, wird der Rückkopplungsparameter verwendet. Die Strahlungsrückkopplung selbst erlaubt keinen fairen Vergleich, da die beiden Experimente unterschiedliche Änderungen der globalen Bodentemperatur aufweisen. Der Rückkopplungsparameter von Wasserdampf ist im Experiment mit interaktiver Chemie bei einem Wert von $2.521 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ etwas kleiner als der Wert von $2.548 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ im Experiment ohne Chemie (siehe Tabelle 6.1). So ist die Änderung des Rückkopplungsparameters von Wasserdampf aufgrund interaktiver Chemie negativ mit $-0.027 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$. Des Weiteren ist Tabelle 6.1 zu entnehmen, dass absolut gesehen die Rückkopplung des stratosphärischen sehr viel kleiner als die des troposphärischen Wasserdampfes ist, aber die Änderung der Rückkopplungsstärke über den stratosphärischen Wasserdampf mit $-0.034 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ über die des troposphärischen Wasserdampfes ($0.007 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) dominiert. Die Änderung der gesamten Wasserdampfückkopplung ist auf die relativ starke Änderung des Wasserdampfresponses in der Stratosphäre (Abbildung 6.7 c) zurückzuführen. Die Änderung der stratosphärischen Wasserdampfückkopplung ist also von gleicher Größenordnung wie die stratosphärische Ozonrückkopplung, welche diese ausgelöst hat (siehe Tabelle 6.1). An dieser Stelle soll aber nochmals darauf hingewiesen werden, dass das meist nicht signifikante Wasserdampfänderungsmuster der Troposphäre (siehe Abbildung 6.7 d), nur ein geringes Vertrauen in die hier berechnete Änderung der Rückkopplungsstärke von troposphärischem Wasserdampf erlaubt.

Abbildungen 6.12 a und b beschreiben das Zonalmittel der Nettostrahlungsrückkopplung für den gesamten, den troposphärischen und den stratosphärischen Wasserdampfresponse bei einer CO_2 -Verdoppelung mit und ohne interaktive Chemie. Auf eine Unterteilung in

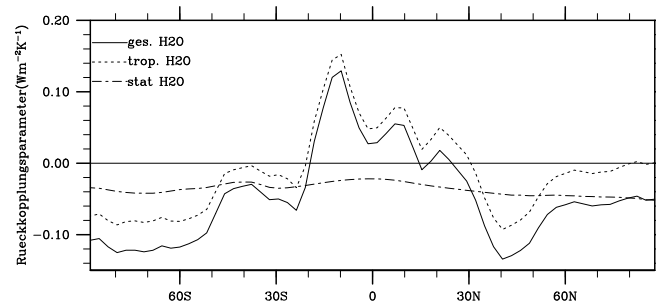


Abbildung 6.13: Änderung des Wasserdampfrückkopplungsparameters α_q durch interaktive Chemie. Dargestellt sind die kurzwellige, langwellige und Nettostrahlungsrückkopplungsänderung für den gesamten (durchgezogene Linie), den troposphärischen (gepunktete Linie) und den stratosphärischen (gestrichelte Linie) Wasserdampf.

kurzwellige und langwellige Rückkopplungskomponente wurde in diesem Fall verzichtet, da der hauptsächliche Strahlungsantrieb von Wasserdampf im Langwelligen liegt. Sowohl im 2^*CO_2 -Experiment mit gekoppelter Chemie (Abbildung 6.12 b) als auch im Experiment ohne Chemie (Abbildung 6.12 a) hat die troposphärische Wasserdampfrückkopplung ihre Maxima in den Tropen (Clausius-Claperon-Gleichung). Die stratosphärische Wasserdampfrückkopplung ist sehr viel kleiner und hat ihre Maxima in den subtropischen Breiten. Wie aus Abbildung 6.7 a und b ersichtlich, ist hier eine starke Änderung des Wasserdampfmischungsverhältnisses zu verzeichnen und die Säule ist in den Extratropen im Vergleich zu den Tropen tiefer. Außerdem gibt es weniger Wolken im Bereich der Subtropen. Die Gesamtwasserdampfrückkopplung wird stark durch die troposphärischen Wasserdampfrückkopplung dominiert. Die beiden Erwärmungsexperimente zeigen kaum Unterschiede im zonalen Profil.

Die Rückkopplungsänderung von stratosphärischem, troposphärischem und Gesamtwasserdampf, ausgelöst durch chemische Rückkopplungen, ist in Abbildung 6.13 als Zonalmittel dargestellt. Gezeigt ist die Änderung des Rückkopplungsparameters, das heißt in diesem Fall, dass die zonale Wasserdampfrückkopplung im Experiment mit und ohne Chemie auf die jeweilige Änderung der globalen Bodentemperatur normiert wurde und voneinander subtrahiert wurden. Abbildung 6.13 zeigt eine durchgehend negative Änderung in der stratosphärischen Wasserdampfrückkopplung mit fast keiner geographischen Variation. Dieser negative Beitrag ist auf die relativ homogene stratosphärische Wasserdampfabnahme (siehe Abbildung 6.7 c) zurückzuführen. Die Änderung der troposphärischen Wasserdampfrückkopplung zeigt positive Werte in den Tropen und negative Werte in den Extratropen. Dieser zonale Verlauf steht qualitativ im Einklang mit der Responseänderung von troposphärischem Wasserdampf: die Maxima in den Tropen stimmen mit der geringsten Wasserdampfabnahme und die Minima in den Extratropen mit der größten Wasserdampfabnahme überein.⁸ Der

⁸Wie in den Tropen deutlich zu sehen ist, passt der Verlauf der Rückkopplungsänderung nicht zum negativen Wasserdampfänderungsmuster der Troposphäre. Ursache hierfür ist die Verwendung des Rückkopplungsparameters, der die Strahlungsrückkopplung auf die globale Bodentemperatur des Experimentes mit und ohne Chemie normiert. Da die Änderung der globalen Bodentemperatur im Experiment mit Chemie etwas gedämpft ist, wird der Strahlungsrückkopplungsparameter in den Tropen größer als im Experiment ohne Chemie.

Verlauf der Änderung im Rückkopplungsparameter vom gesamten Wasserdampf ist durch die troposphärische Wasserdampfrückkopplungskomponente bestimmt, der globale Mittelwert der geänderten Wasserdampfückkopplung hingegen ist durch die stratosphärischer Wasserdampfückkopplungsänderung bestimmt, da hier keine Kompensationseffekte von positiven und negativen Beiträgen auftreten.

6.4 Linearität chemischer Rückkopplungen in weiteren CO₂-Erhöhungssimulationen

Weitere CO₂-Erhöhungsexperimente mit gekoppelter Chemie wurden im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt, um die Linearität von Klimasensitivität und Strahlungsrückkopplungsstärke bei unterschiedlich starken CO₂-Antrieben zu untersuchen. Hierzu wurden Klimagleichgewichtsexperimente mit und ohne interaktive Chemie durchgeführt, die neben dem CO₂-Verdoppelungsexperiment ein 442-ppmv-CO₂- und ein 4*CO₂-Erhöhungsexperiment beinhalten. Der zonal gemittelte Response der strahlungsaktiven Gase, sowie der Wasserdampfänderung für das 442-ppmv-CO₂- und das 4*CO₂-Erhöhungsexperiment stehen in qualitativer Übereinstimmung mit dem oben beschriebenen Ergebnissen des CO₂-Verdoppelungsexperimentes (Abbildungen werden hier nicht gezeigt). Die Signifikanz des Änderungsmuster ist im Falle des 442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperimentes relativ gering und nimmt mit zunehmendem Antrieb zu (siehe Abbildung A2 im Anhang dieser Arbeit).

Tabelle 6.2 fasst die mittels der Stuber-Methode bestimmten Strahlungsrückkopplungen für das 2*CO₂- und das 4*CO₂-Erhöhungsexperiment zusammen. Das CO₂-Erhöhungsexperiment von 442 ppmv wird im Folgenden nicht weiter in die Interpretation einbezogen, da es aufgrund des geringen Antriebs starken statistischen Schwankungen (z.B. in der Änderung des Wasserdampfresponses) unterliegt und somit weniger zuverlässig bewertbar ist. Die

Tabelle 6.2: Rückkopplungsparameter α für die 2*CO₂- und 4*CO₂-Erhöhungsexperimente mit und ohne Chemie. Die Änderung der Rückkopplungsparameter infolge interaktiver Chemie sind in Klammern angegeben.

	2*CO ₂ _{MLO,uncoup} [Wm ⁻² K ⁻¹]	2*CO ₂ _{MLO,coup} [Wm ⁻² K ⁻¹]	4*CO ₂ _{MLO,uncoup} [Wm ⁻² K ⁻¹]	4*CO ₂ _{MLO,coup} [Wm ⁻² K ⁻¹]
$\alpha(\text{O}_3)$	0	-0.022	0	-0.015
$\alpha(\text{CH}_4)$	0	≈ 0	0	≈ 0
$\alpha(\text{N}_2\text{O})$	0	≈ 0	0	≈ 0
$\alpha(\text{H}_2\text{O})$	2.548	2.521 (-0.027)	2.572	2.525 (-0.047)
$\alpha(\text{H}_2\text{O, tropo})$	2.323	2.3307 (+0.007)	2.309	2.299 (-0.010)
$\alpha(\text{H}_2\text{O, strato})$	0.233	0.199 (-0.034)	0.293	0.250 (-0.043)

Tabelle zeigt, dass in allen CO₂-Erhöhungsexperimenten die negativen Strahlungsrückkopplungen über Ozon und die daraus resultierende Rückkopplungsänderung im Wasserdampf den größten Beitrag liefern, wobei wieder die stratosphärische Rückkopplungskomponente stark überwiegt. Trotz der weitgehenden Linearität im Strahlungsantrieb beim Übergang vom 2*CO₂- zum 4*CO₂-Experiment verhalten sich viele Strahlungsrückkopplungen nicht-linear, selbst unter Berücksichtigung von Signifikanzaspekten. Die negative Strahlungsrückkopplung über Ozon nimmt betragsmäßig mit zunehmender CO₂-Störung ab: der Strahlungsrückkopplungsparameter von Ozon ist im CO₂-Verdoppelungsexperiment mit $-0.022 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ größer als im 4*CO₂-Experiment ($-0.015 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$). Die negative Strahlungsrückkopplung über die Wasserdampfänderung hingegen wird mit zunehmender CO₂-Konzentration betragsmäßig größer, mit negativen Rückkopplungsparametern von $-0.027 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ für das CO₂-Verdoppelungsexperiment und $-0.047 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ für das 4*CO₂-Experiment. Für diese negative Rückkopplung ist vor allem die Änderung des stratosphärischen Wasserdampfes aufgrund interaktiver Chemie verantwortlich, die im 2*CO₂-Experiment einen Wert von $-0.034 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ und im 4*CO₂ einen Wert von $-0.043 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ aufweist.

6.5 Einordnung chemischer Rückkopplungen

Um die Größe der chemischen Rückkopplungen zu bewerten und ihre relative Bedeutung für die Klimasensitivität zu bestimmen, werden sie in diesem Abschnitt in Relation zu physikalischen Rückkopplungen und zu gegenwärtig wirksamen Strahlungsantrieben gestellt, die hauptsächlich durch anthropogene Änderungen von strahlungsaktiven Gasen bedingt sind.

Zunächst werden in Tabelle 6.3 die Modellmittelwerte der in der Studie von Bony et al. (2006) bestimmten physikalischen Rückkopplungsparameter für eine CO₂-Verdoppelung im Vergleich zu den in dieser Arbeit berechneten chemischen Rückkopplungen angegeben. Dieser Tabelle kann entnommen werden, dass die chemischen Rückkopplungen sehr viel kleiner als die physikalischen Rückkopplungen sind und somit einen eher geringen Einfluss auf die Klimasensitivität des Systems haben.

Tabelle 6.3: Physikalische Rückkopplungsparameter α_{phys} für eine CO₂-Verdoppelung (Modellmittelwert, entnommen aus Bony et al. (2006) in Relation zu den chemischen Rückkopplungsparametern α_{chem} im CO₂-Verdoppelungsexperiment (2*CO₂_{MLO,coup}).

	α_{phys} [Wm ⁻² K ⁻¹]		α_{chem} [Wm ⁻² K ⁻¹]
Wasserdampf	1.8	Ozon	-0.022
Lapse Rate	-0.84	Methan	0
Wolken	0.69	Lachgas	0
Albedo	0.28	Wasserdampfänderung	-0.027

Tabelle 6.4: Strahlungsantrieb aufgrund anthropogener Emissionsänderungen von troposphärischem und stratosphärischem Ozon (Solomon et al., 2007) im Vergleich zur Rückkopplung über stratosphärisches und troposphärisches Ozon im CO₂-Verdoppelungsexperiment ($2^*CO_{2MLO,coup}$). Die Rückkopplungsstärke des CO₂-Verdoppelungsexperimentes ist in diesem Fall nicht als Rückkopplungsparameter dargestellt, sondern wird mit der global gemittelten Bodentemperaturänderung von 2.81 K multipliziert.

	Strahlungsantrieb (IPCC) [Wm ⁻²]	Rückkopplungsstärke 2*CO ₂ [Wm ⁻²]
O ₃ (tropo)	0.35	0.022
O ₃ (strato)	-0.05	-0.087

Des Weiteren soll das Verhalten der chemischen Rückkopplungen am Beispiel des 2^*CO_2 -Experimentes relativ zum gegenwärtigen Strahlungsantrieb durch Ozonänderungen, die durch anthropogene Emissionsänderungen induziert werden, dargestellt werden. Tabelle 6.4 zeigt den anthropogen bedingten Strahlungsantrieb, berechnet aufgrund der Emissionsänderung von 1750 bis 2005 (Solomon et al., 2007). Diese Werte wurden der Abbildung 1.1 entnommen. Gegenübergestellt sind die chemischen Rückkopplungen der 2^*CO_2 -Simulation mit interaktiver Chemie. Aus dieser Tabelle geht hervor, dass die Rückkopplung über troposphärisches Ozon mit 0.022 Wm^{-2} unbedeutend ist im Vergleich zum Strahlungsantrieb von anthropogen bedingten troposphärischen Ozonänderungen, welcher mit einem Wert von 0.35 Wm^{-2} angegeben wird. Die Rückkopplung über stratosphärisches Ozon bei einer CO₂-Verdoppelung ist hingegen mit -0.087 Wm^{-2} betragsmäßig größer als der Strahlungsantrieb des auf Grund anthropogener Emissionen beobachteten stratosphärischen Ozonschwund von -0.05 Wm^{-2} .

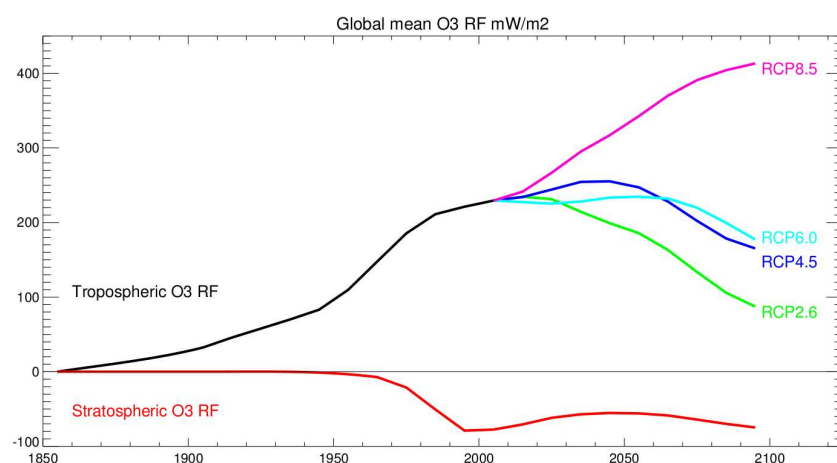


Abbildung 6.14: Zeitliche Entwicklung (1850-2100) des global gemittelten Strahlungsantriebes von stratosphärischem (rot) und troposphärischem Ozon (schwarz bis 2000). Der troposphärische Ozonstrahlungsantrieb folgt ab 2000 vier unterschiedlichen Szenarien für Treibhausgase und Ozonvorläufersubstanzen. Das stratosphärische Ozon ist durch ein Treibhausgas- und ein Halogenszenario beschrieben. Nach Cionni et al. (2011).

Aus Modellsimulationen des 21. Jahrhunderts entnommene Ozonänderungen (Cionni et al., 2011) bestätigen die im Rahmen dieser Arbeit erzielten Ergebnisse durchaus auch im quantitativen Sinn. Abbildung 6.14 macht die Konkurrenz von Rückkopplung und Antrieb deutlich. Die rote Kurve illustriert die zeitliche Entwicklung (1850-2100) des global gemittelten Ozonstrahlungsantriebes von stratosphärischem Ozon. Die stratosphärischen Ozonkonzentrationen sind durch die Ozonabnahme durch Halogene im frühen 21. Jahrhundert und einer späteren Erholung der Ozonschicht durch Abnahme der Halogene bestimmt. Im späten 21. Jahrhundert sind es die Klima-Chemie-Wechselwirkungen, hervorgerufen durch die Klimaänderung, die eine erneute leichte Abnahme im Ozonstrahlungsantrieb zeigen. Aus der Abbildung geht also hervor, dass die Größenordnung des Strahlungsantriebes im frühen und späten 21. Jahrhundert, bei völlig unterschiedlichen Mechanismen, übereinstimmen. Für den Vergleich ist es noch wichtig zu beachten, dass die hier berechneten Strahlungsrückkopplungen durch stratosphärisches Ozon (-0.087 Wm^{-2}) bei der für die CO₂-Verdoppelung errechnete Erwärmung der Gleichgewichtstemperatur von 2.8 K und die etwa gleich große Strahlungswirkung in Cionni et al. (2011) für eine Temperaturerwärmung von 3.1 K im Jahre 2100 (verwendetes IPCC-Emissionsszenario ist REF-B2) gilt.

Abschließend kann gesagt werden, dass vor allem der Response der Stratosphäre in Folge interaktiver Klima-Chemie-Wechselwirkungen einen wichtigen Beitrag für die Änderung der Strahlungswirkung von stratosphärischem Ozon liefert. Die Rückkopplungen über stratosphärisches Ozon und stratosphärische Wasserdampfänderung sind im Vergleich zum gegenwärtigen Strahlungsantrieb von anthropogenen Emissionen bedeutend und es wichtig sie zu berücksichtigen.

Kapitel 7

Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten NO_x - und CO-Emissionen

Als Beispiel eines Sensitivitätsexperimentes mit Nicht- CO_2 -angetriebenen Störungen wird in diesem Kapitel die Rolle chemischer Rückkopplungen in Simulationen mit 9-fach erhöhten anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen beschrieben. Wie bereits in Kapitel 4.3 erläutert, sind die chemischen und strahlungsaktiven Gase in diesem Experiment sowohl für den Antrieb als auch für chemische Rückkopplungen verantwortlich. Zunächst wird in den Abschnitten 7.1 und 7.2 der Response der für diese Arbeit relevanten chemischen und physikalischen Parameter dargestellt und in Vergleich zum Response des CO_2 -angetriebenen Erhöhungsexperiment gestellt. Abschnitt 7.3 beschreibt dann das Rückkopplungsverhalten der strahlungsaktiven Gase unter Einschluss des Wasserdampfes. Zuletzt erfolgt eine zusammenfassende Diskussion aller Erhöhungsexperimente (Abschnitt 7.4).

7.1 Response und Responseänderung strahlungsaktiver Gase

7.1.1 Ozon

Bevor das simulierte Ozonänderungsmuster beschrieben wird, soll an dieser Stelle ein Eindruck von der räumlichen Struktur anthropogener NO_x - und CO-Emissionen gegeben werden. Aus Abbildung 7.1 a, welche die Gesamtemissionen anthropogener NO_x -Emissionen am Boden für die Gegenwart zeigt, wird ersichtlich, dass die höchsten NO_x -Emissionen in China, Indien, Mittelfrika, Europa und USA zu finden sind, da hier die Emissionen aus Industrie, Verkehr und Biomassenverbrennung maximal sind. Analog ist die räumliche Verteilung der anthropogenen CO-Emissionen gezeigt mit maximalen Werten in Mittel- und Südafrika infolge von Biomassenverbrennung und maximalen Werten in den USA, Asien und Europa aufgrund hoher Emissionen aus dem Verkehrs- und Industriesektor. Die Datengrundlage dieser Abbildungen sind die Emissionskataster aus Lamarque et al. (2010), welche auch für den fünften IPCC-Sachbestandsbericht (AR5) verwendet werden.

Eine Erhöhung der oben vorgestellten anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen um einen Faktor 9 (eine genaue Beschreibung der variierten Randbedingungen ist in Tabelle 4.1 gegeben) bewirkt geänderte Mischungsverhältnisse in vielen chemisch aktiven Gasen. Die Anordnung der in diesem Kapitel gezeigten Abbildungen der zonal und langjährig gemittelten Konzentrationsänderungsmuster von Spurengasen werden in Abbildung 7.2 schematisch dargestellt: Teilbild a zeigt jeweils die emissionsbedingte Konzentrationsänderung, die sich aus dem Experiment mit fester SST ergibt; hier agieren die emittierten Gase als Vorläufersubstanzen (direkter Emissionseffekt). Es ist zu beachten, dass trotz der unveränderten SST in dieser Simulation eine Temperaturveränderung in der Stratosphäre auftritt, denn die Änderung der Ozonkonzentration und der dadurch induzierte Strahlungseffekte wird oberhalb der Tropopause nicht durch die nicht-interaktive SST unterdrückt. In Teilbild b wird das entsprechende Muster im Experiment mit gekoppeltem Ozean gezeigt, in welchem die Konzentrationen sowohl auf die geänderten Emissionen als auf das geänderte Klima reagieren (direkter Emissionseffekt und Rückkopplungseffekt über das Klima). In Teilbild c wird die Differenz der Experimente mit fester SST und mit Deckschichtozean gebildet. Diese stellt den Rückkopplungseffekt im voll gekoppelten System dar, dem in Teilbild d der des 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperimentes, welche eine nahezu gleiche Antriebsstärke aufweist, gegenübergestellt wird.

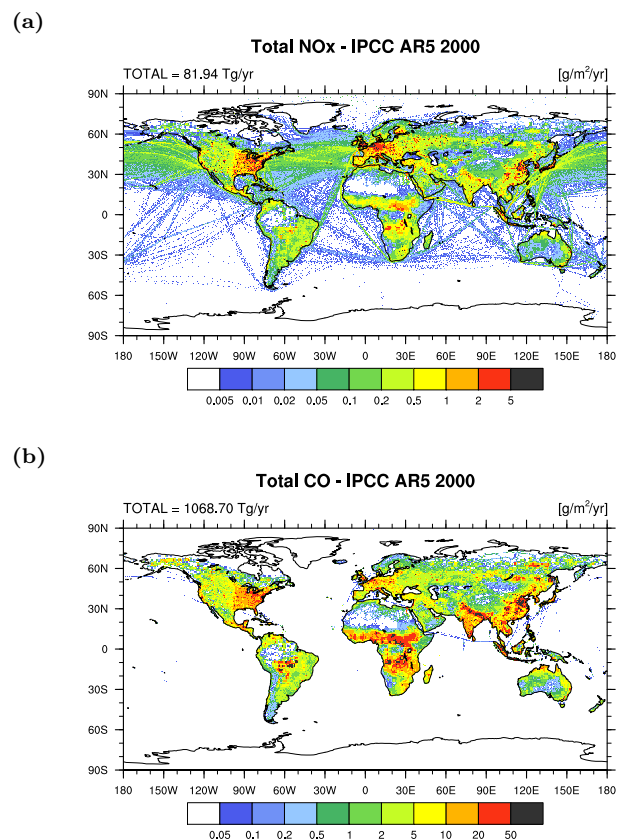


Abbildung 7.1: Räumliche Verteilung der jährlichen (a) NO_x - und (b) CO -Emissionen (Verkehr, Industrie und Biomassenverbrennung) der Gegenwart. Angegeben in $\text{g}/\text{m}^2/\text{Jahr}$. Zugrundeliegende Emissionen aus Lamarque et al. (2010).

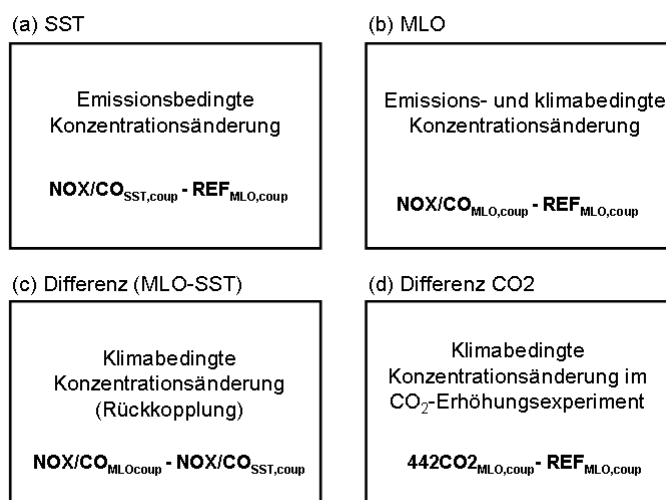


Abbildung 7.2: Schematische Beschreibung der im Folgenden dargestellten Abbildungen für das durch NO_x- und CO-Emissionen angetriebene Erhöhungsexperiment. Teilbild a zeigt die Konzentrationsänderung im Erhöhungsexperiment mit vorgeschriebener SST, Teilbild b die Konzentrationsänderung im Erhöhungsexperiment mit gekoppeltem Ozean und Teilbild c die Responseänderung infolge interaktiv gekoppelter Chemie. Teilbild d ermöglicht den Vergleich mit dem 442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperiment. Experimentabkürzungen sind in Tabelle 4.1 zu finden.

Zunächst werden in Abbildungen 7.3 a und 7.4 a die Emissionsänderungsmuster für den gesamten reaktiven Stickstoff (NO_y) und für Kohlenmonoxid (CO) im zonalen Mittel dargestellt (relative Änderung in % im Bezug auf das Referenzexperiment). Es zeigt sich, dass die Emissionen in der Troposphäre sowohl für NO_y als auch für CO, wegen der guten Durchmischung, relativ homogen erhöht sind mit etwas höheren Konzentrationen in der Nordhemisphäre, wo die Emissionen maximal sind. In die Stratosphäre gelangen diese Emissionen mit der atmosphärischen Zirkulation. Hier sind für die NO_y-Konzentrationen deutlich geringere prozentuale Zuwächse zu verzeichnen, was hauptsächlich auf den größeren NO_x-Hintergrund in Stratosphäre zurückzuführen ist. Die negative Änderung im stratosphärischen NO_y ist als Reaktion auf die verstärkte Denitrifizierung erklärbar. Das CO-Mischungsverhältnis nimmt in der unteren Stratosphäre stark zu, eine signifikante Abnahme tritt hingegen in der nördlichen mittleren Stratosphäre auf, infolge der abgeschwächten Photolyse von CO₂ in einer strahlungsbedingt kälteren Stratosphäre (CO₂+hν → CO+O).

Die resultierende emissionsbedingte Änderung des Ozonmischungsverhältnisses (direkter Emissionseffekt) wird in Abbildung 7.5 a dargestellt (wieder im zonalen jährlichen Mittel, in % relativ zum Referenzexperiment). Eine Ozonzunahme ist in der gesamten Stratosphäre und Troposphäre zu verzeichnen, wobei die stärkste Ozonzunahme in den nördlichen und mittleren Breiten der Troposphäre stattfindet, da hier die anthropogenen Emissionen von NO_x und CO maximal sind (siehe Abbildungen 7.3 a und 7.4 a). In den niederen Breiten reicht die Ozonzunahme bis in große Höhen, da die konvektive Durchmischung die zusätzlichen Spurengase, sowohl der Vorläufersubstanzen als auch Ozon selbst, über die gesamte Tiefe

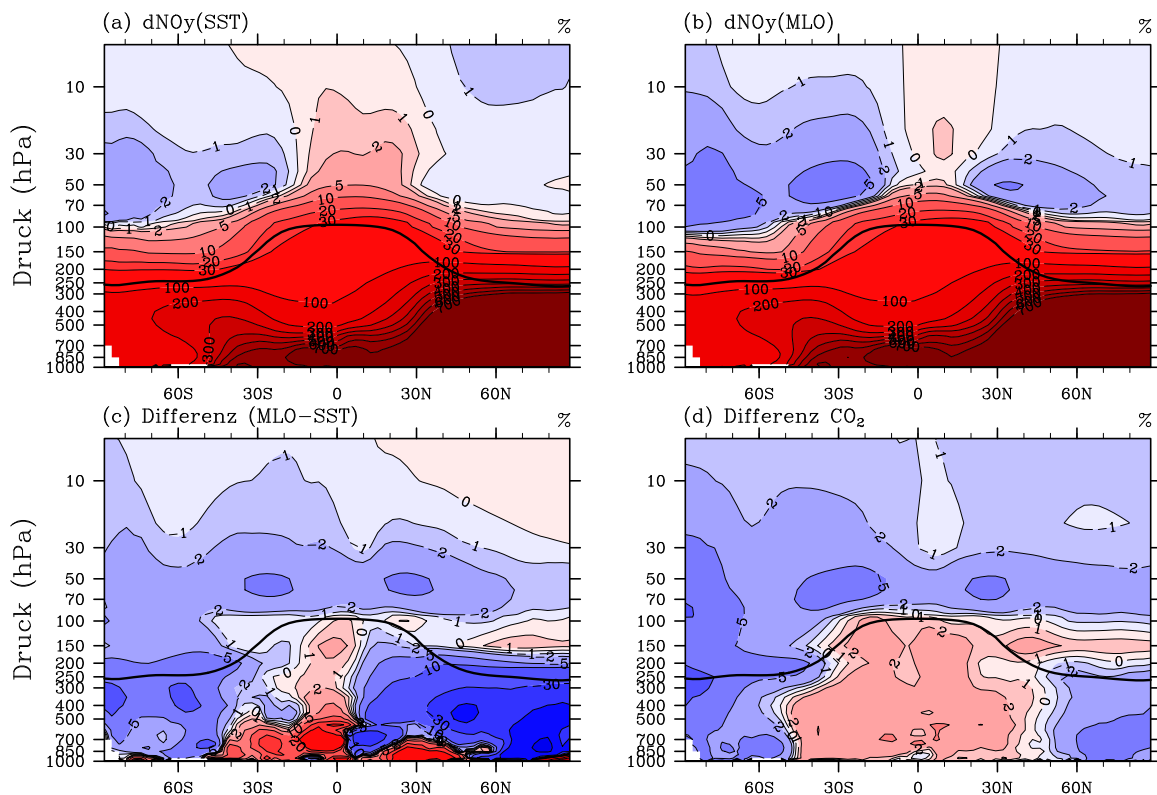


Abbildung 7.3: Zonalmittel (Jahresmittel) der relativen Änderung des NO_y -Mischungsverhältnisses auf Grund einer Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen (in % Volumemischungsverhältnis im Bezug auf ungestörte Referenzsimulation) (a) im Experiment mit vorgeschriebener SST und (b) im Experiment mit gekoppeltem Ozean. Abbildung (c) zeigt die Responseänderung des NO_y -Mischungsverhältnisses infolge interaktiv gekoppelter Chemie (Differenz der oben gezeigten Abbildungen) und stellt sie der Responseänderung des 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment gegenüber (Abbildung d). Die schwarze Linie markiert jeweils die Lage der Tropopause des Referenzexperimentes.

der Troposphäre verteilt. Die Ozonzunahme in der Stratosphäre ist zum einen auf den Eintrag erhöhter troposphärischer Ozonkonzentrationen und zum anderen auf die geänderten Konzentrationen der für den Ozonabbau wichtigen katalytischen Gase NO_x und Cl_y zurückzuführen (Abbildung 7.3 a und 7.6 a). In der Stratosphäre fällt die relative Ozonzunahme deutlich geringer aus und wird mit zunehmender Höhe kleiner, was an der mit der Höhe zunehmender Ozonhintergrundkonzentration liegt. Die durch anthropogene NO_x - und CO -Emissionen hervorgerufene Ozonänderung in Abbildung 7.5 a bewirkt einen globalen Strahlungsantrieb von 1.22 Wm^{-2} .

Der Vergleich des Ozonänderungsmusters mit früheren Arbeiten bietet sich an, um die Leistungsfähigkeit der in dieser Arbeit verwendete Modellkonfiguration mit einem vereinfachten Chemiemodul zu überprüfen. Zum Beispiel untersucht auch die Arbeit von Gauss et al. (2006) mit unterschiedlichen Klima-Chemie-Modellen Ozonänderungen in der Troposphäre und unteren Stratosphäre infolge von erhöhten anthropogenen Ozonvorläuferemissionen. Hierbei handelt es sich um eine Erhöhung der Vorläufersubstanzen CO , NO_x , CH_4 und

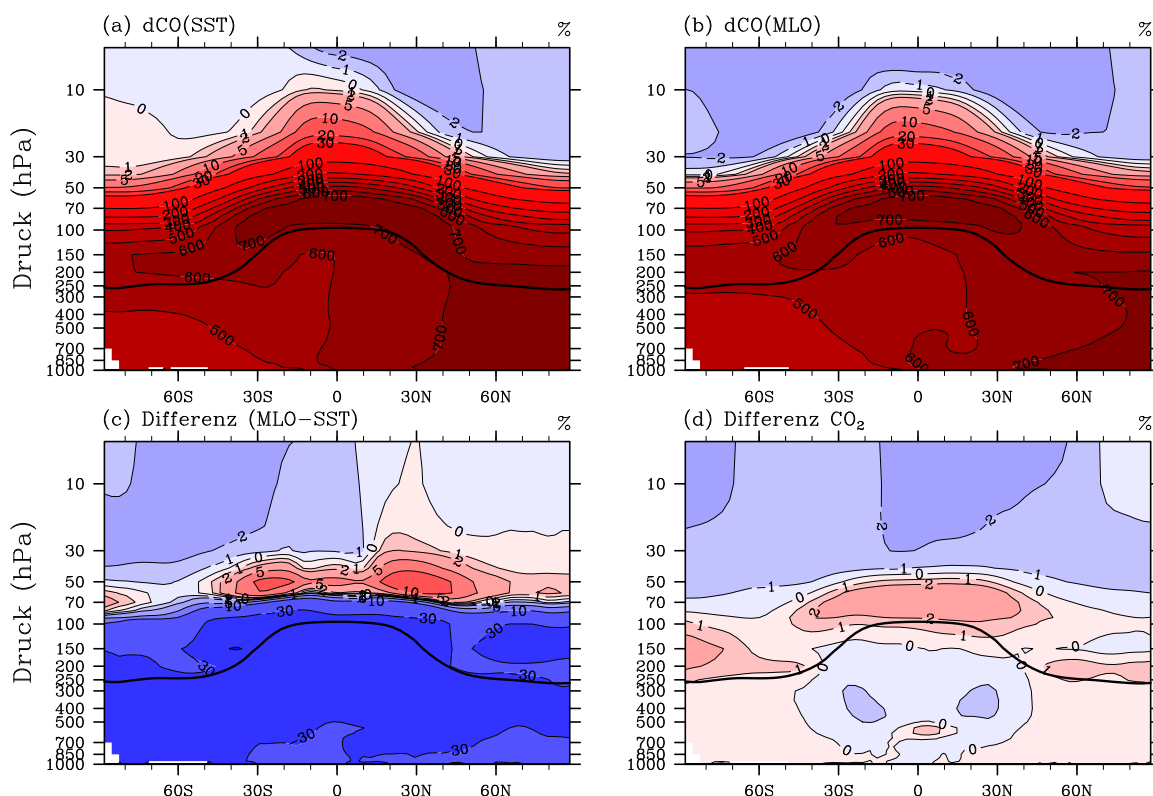


Abbildung 7.4: Zonalmittel (Jahresmittel) der relativen Änderung des CO-Mischungsverhältnisses auf Grund einer Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen (in % Volumemischungsverhältnis im Bezug auf ungestörte Referenzsimulation) (a) im Experiment mit vorgeschriebener SST und (b) im Experiment mit gekoppeltem Ozean. Abbildung (c) zeigt die Responseänderung des CO-Mischungsverhältnisses infolge interaktiv gekoppelter Chemie (Differenz der oben gezeigten Abbildungen) und stellt sie der Responseänderung des 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment gegenüber (Abbildung d). Die schwarze Linie markiert jeweils die Lage der Tropopause des Referenzexperimentes.

NMHC vom vorindustriellen Wert des Jahres 1850 auf den Wert des Jahres 2000. Ihre Experimente sind dem oben beschriebenen SST-Experiment äquivalent, denn nur die erhöhten Emissionen bewirken chemische Änderungen, es finden keine Rückkopplung auf die Chemie über Klimaänderungen statt. Die Studie zeigt ein Ozonänderungsmuster mit einer Ozonzunahme in fast der gesamten Troposphäre mit der stärksten Zunahme von Ozon in den mittleren Breiten, wo die Hauptquellen anthropogener Emissionen liegen. Hinsichtlich ihrer zonalen Struktur zeigt der Vergleich eine relativ gute Übereinstimmung im Ozonänderungsmuster. Aufgrund der geringeren Emissionszunahme (und auch der zusätzlich berücksichtigten Vorläufersubstanzen) ist das Ozonänderungsmuster der Studie vor allem der Größe nach unterschiedlich zu den Ergebnissen dieser Arbeit.⁹

⁹In einem weiteren Experiment mit dem dieser Arbeit zugrundeliegenden Modellsystem wurden alle anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen herausgenommen. Dies ermöglicht einen direkteren Vergleich mit der Studie von Gauss et al. (2006): Die Ozonänderungsmuster stimmen auch quantitativ gut überein.

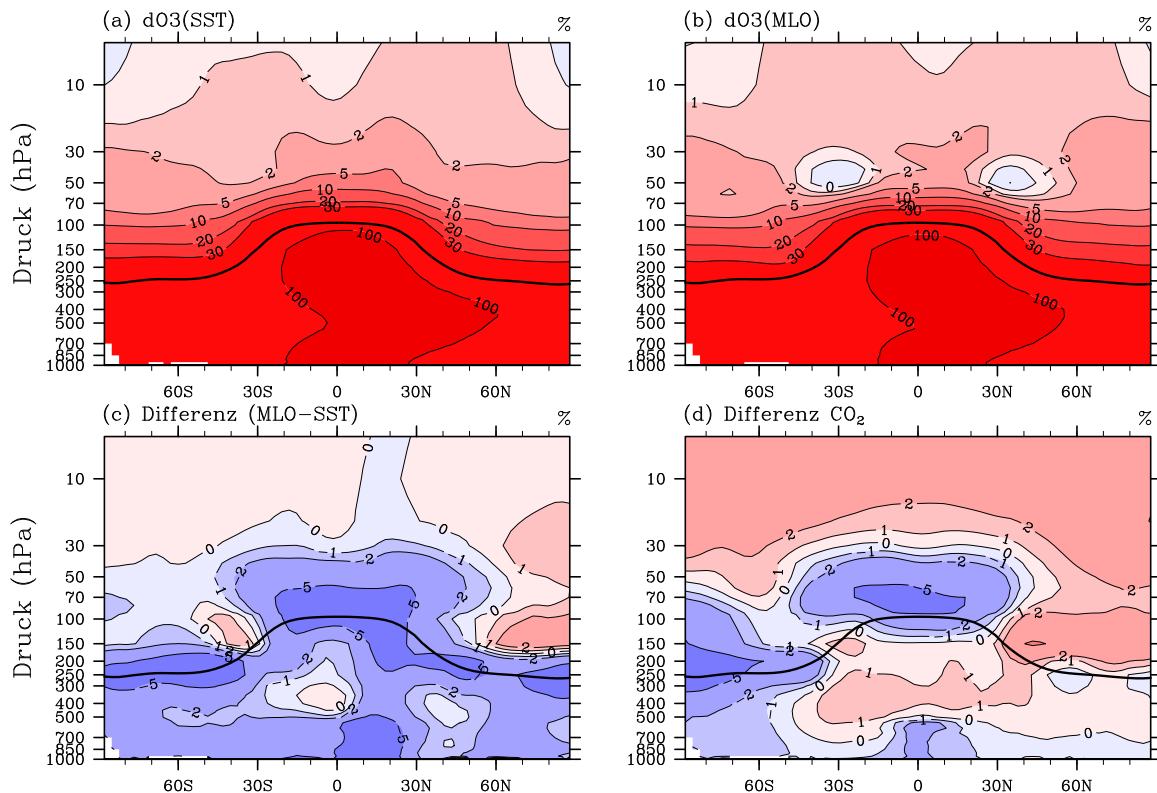


Abbildung 7.5: Zonalmittel (Jahresmittel) der relativen Änderung des Ozonmischungsverhältnisses auf Grund einer Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen (in % Volumensmischungsverhältnis im Bezug auf ungestörte Referenzsimulation) (a) im Experiment mit vorgeschriebener SST und (b) im Experiment mit gekoppeltem Ozean. Abbildung (c) zeigt die Responseänderung des Ozonmischungsverhältnisses infolge interaktiv gekoppelter Chemie (Differenz der oben gezeigten Abbildungen) und stellt sie der Responseänderung des 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment gegenüber (Abbildung d). Die schwarze Linie markiert jeweils die Lage der Tropopause des Referenzexperimentes.

Wird die Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen im Experiment mit gekoppeltem Ozean durchgeführt, wirken zusätzlich Rückkopplungen in Folge des geänderten (wärmeren) troposphärischen Klimas, in ähnlicher Weise wie im vorausgegangenen Kapitel für die CO_2 -angetriebenen Simulationen beschrieben. Das resultierende Ozonänderungsmuster ist in Abbildung 7.5 b wiedergegeben. Es ist dem des SST-Experiment sehr ähnlich, da hier vor allem die stark skalierten Ozonvorläufersubstanzen NO_x und CO die Änderung der gesamten Ozonverteilung dominieren. Der Effekt der Klimaänderung (indirekter Effekt) auf die zonale Ozonverteilung stellt einen relativ geringen Zusatzeffekt dar. Um diesen sichtbar zu machen wird in Abbildung 7.5 c die Differenz zwischen dem Response mit gekoppeltem Ozean und dem Response mit fester SST gebildet. Sie beschreibt also die Responseänderung im Ozonmischungsverhältnis im voll gekoppelten System. Eine signifikante Ozonabnahme, gegenüber dem Response des Modells ohne Klimaänderungen, ist in fast der gesamten Atmosphäre zu verzeichnen. Die stärkste prozentuale Abnahme des Ozonmischungsverhältnisses von über 5% (wiederum relativ zum Referenzexperiment) zeigt sich in der unteren tropischen

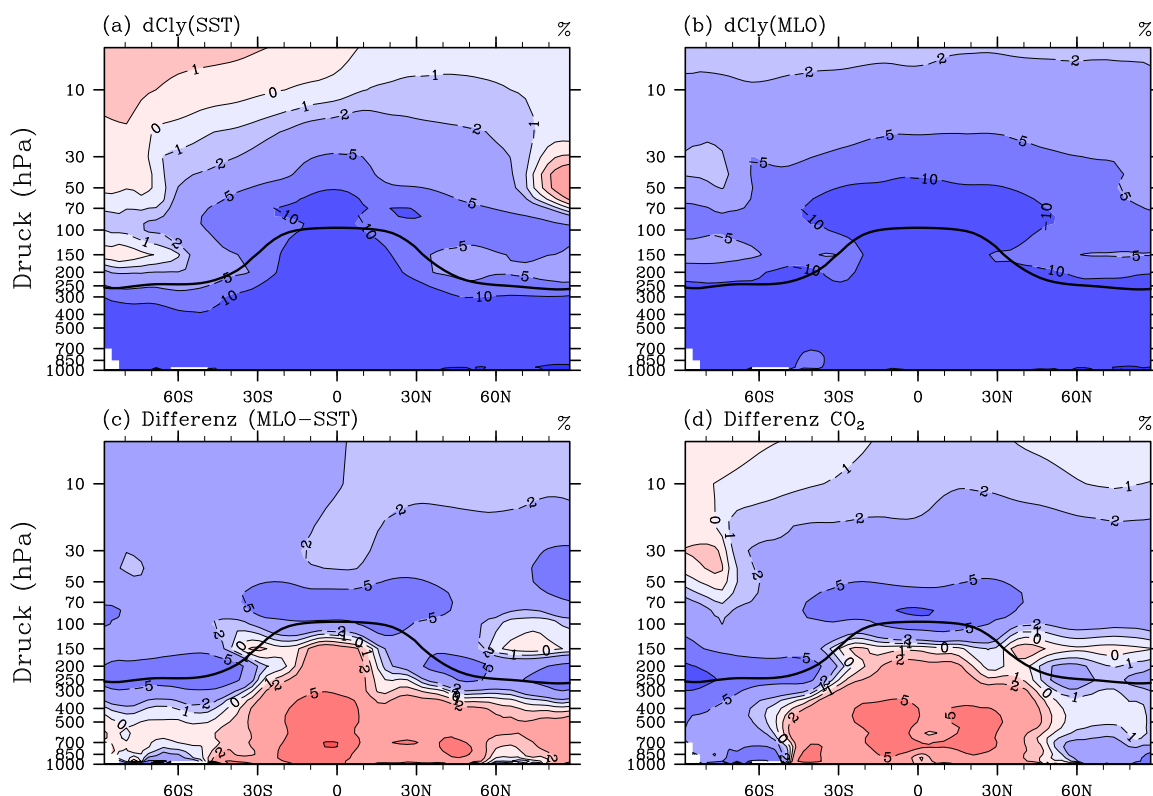


Abbildung 7.6: Zonalmittel (Jahresmittel) der relativen Änderung des Cl_y -Mischungsverhältnisses auf Grund einer Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen (in % Volumenmischungsverhältnis im Bezug auf ungestörte Referenzsimulation) (a) im Experiment mit vorgeschriebener SST und (b) im Experiment mit gekoppeltem Ozean. Abbildung (c) zeigt die Responseänderung des Cl_y -Mischungsverhältnisses infolge interaktiv gekoppelter Chemie (Differenz der oben gezeigten Abbildungen) und stellt sie der Responseänderung des 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment gegenüber (Abbildung d). Die schwarze Linie markiert jeweils die Lage der Tropopause des Referenzexperimentes.

Stratosphäre sowie dem Tropopausenbereich und der unteren tropischen Troposphäre. Die mittlere Stratosphäre zeigt hingegen eine leichte Zunahme, die jedoch nicht signifikant ist.¹⁰

Der Vergleich mit dem CO_2 -angetriebenen Klimaerwärmungsexperiment (Abbildung 7.5 d), welches bei einer Erhöhung der CO_2 -Konzentration auf 442 ppmv in etwa die gleiche Antriebsstärke aufweist, zeigt in der unteren tropischen Stratosphäre ein ähnliches negatives Ozonänderungsmuster. Eine genaue Analyse ergibt aber, dass dies verschiedenenartigen Mechanismen zuzuschreiben ist. Wie bereits in Kapitel 6 erörtert, ist für die Ozonabnahme im CO_2 -Erhöhungsexperiment das verstärkte Tropical-upwelling verantwortlich. Im emissionsangetriebenen Experiment hingegen findet die signifikante Verstärkung des aufsteigenden Astes der Brewer-Dobson-Zirkulation nicht statt und die Ozonabnahme kann auf das Einbringen geringerer Ozonkonzentrationen aus der Troposphäre, wieder im Vergleich zum Response des Modells ohne Klimaänderung, zurückgeführt werden. Deutliche Unterschiede

¹⁰Der Signifikanztest dieses Änderungsmusters ist in Abbildung A6 im Anhang dieser Arbeit zu finden.

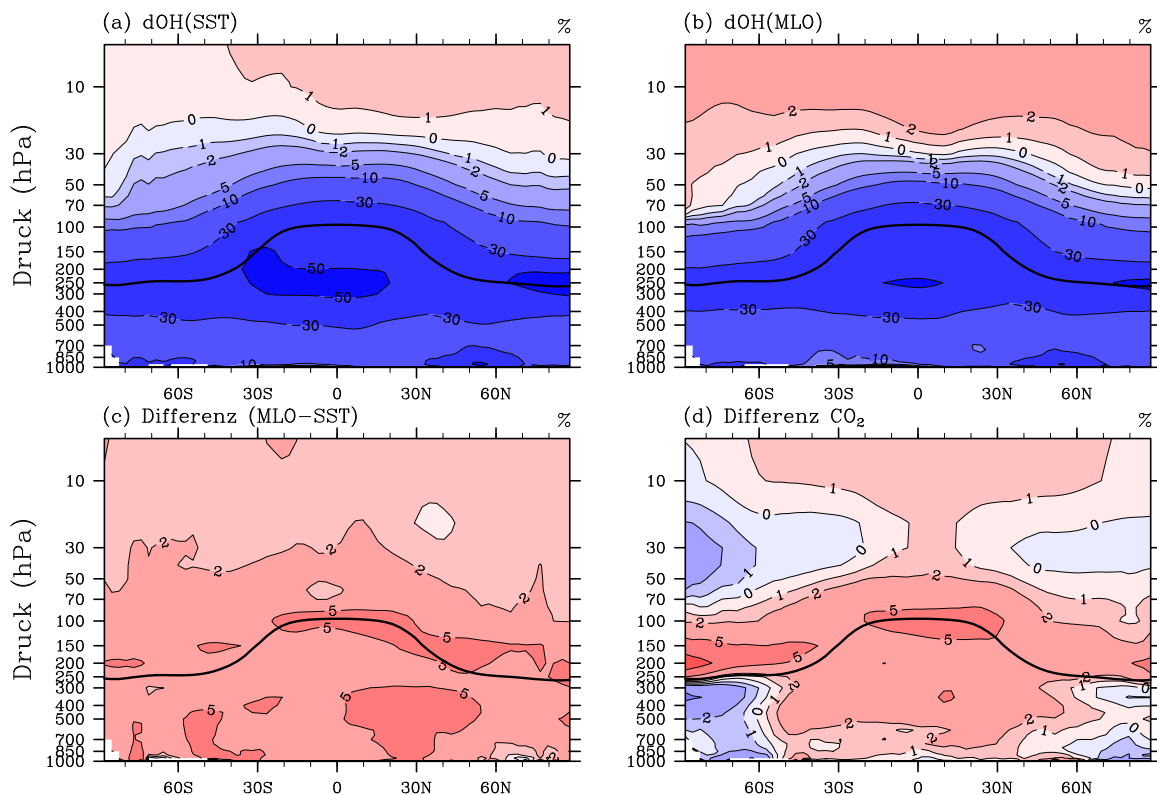


Abbildung 7.7: Zonalmittel (Jahresmittel) der relativen Änderung des OH-Mischungsverhältnisses auf Grund einer Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen (in % Volumensmischungsverhältnis im Bezug auf ungestörte Referenzsimulation) (a) im Experiment mit vorgeschriebener SST und (b) im Experiment mit gekoppeltem Ozean. Abbildung (c) zeigt die Responseänderung des OH-Mischungsverhältnisses infolge interaktiv gekoppelter Chemie (Differenz der oben gezeigten Abbildungen) und stellt sie der Responseänderung des 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment gegenüber (Abbildung d). Die schwarze Linie markiert jeweils die Lage der Tropopause des Referenzexperimentes.

im Ozonänderungsmuster treten im Bereich der mittleren Stratosphäre sowie in der Troposphäre auf. Die nicht signifikante Ozonzunahme in der mittleren Stratosphäre im NO_x - und CO -angetriebenen Experiment steht der signifikanten starken positiven Ozonänderung im CO_2 -Experiment gegenüber. Der Mechanismus der verlangsamten Ozondestruktion ist im emissionsangetriebenen Experiment aufgrund der schwächeren stratosphärischen Temperaturabnahme in den betreffenden Höhen nicht so bedeutend (siehe Abschnitt 7.2).

Der Rückgang der troposphärischen Ozonzunahme in Abbildung 7.5 c wird hervorgerufen durch die relativ starke klimabedingte Abnahme des CO -Mischungsverhältnisses in Troposphäre und der unteren Stratosphäre (Abbildung 7.4 c): Über die abgeschwächte Oxidation von CO wird weniger Ozon gebildet (Reaktionen 2.20-2.24). Zusätzlich wird das klimabedingte Ozonänderungsmuster auch durch die als Ozonvorläufer agierenden, geänderten NO_y -Konzentrationen (Abbildungen 7.3 c) modifiziert. Die NO_y -Zunahme in den Tropen ist vor allem auf ein stark abgeschwächtes Auswaschen von HNO_3 zurückzuführen. Die CO_2 -angetriebene Erhöhungssimulation (Abbildung 7.5 d) zeigt deutliche Unterschiede im

troposphärischen Ozonänderungsmuster: die signifikante Abnahme im Ozon ist hier nicht zu finden, dagegen eine Ozonzunahme in der mittleren tropischen Troposphäre und eine Ozonabnahme in den südlichen Breiten und im Bereich der unteren tropischen Troposphäre. Wie in Kapitel 6.1.1 erwähnt, ist das Ozonänderungsmuster in der CO₂-Simulation hauptsächlich durch das sich in einem wärmeren Klima ändernde Stickoxidverteilung (Abbildung 7.3 d) bestimmt. Das CO-Änderungsmuster ist hier hingegen unbedeutend (Abbildung 7.4 d).¹¹

Am Beispiel des Ozonänderungsmusters wird deutlich, dass in unterschiedlich angetriebenen Klimaänderungsexperimenten die chemischen Rückkopplungsmechanismen variieren, und dass die dominierenden Effekte und damit auch die Netto-Strahlungsrückkopplung verschieden sein können.

7.1.2 Methan und Lachgas

Abbildungen 7.8 a und b zeigen die prozentuale Abweichung des Methanmischungsverhältnisses relativ zum Referenzexperiment als zonales jährliches Mittel, sowohl für das NO_x- und CO-Emissionserhöhungsexperiment mit fester SST als auch mit gekoppeltem Ozean. Aus Abbildung 7.8 a geht hervor, dass erhöhte NO_x- und CO-Emissionen zu einer signifikanten Methanzunahme in der Stratosphäre führen. Die Abnahme des Methanmischungsverhältnisses in der mittleren nördlichen Stratosphäre ist auf Grund der höheren dynamischen Variabilität der Nordhemisphäre, die zu einem erhöhten Rauschen auch in der Spurengasverteilung führt, statistisch nicht signifikant (siehe Abbildung A4 im Anhang dieser Arbeit). Die Methanzunahme lässt sich durch die abgeschwächte Methanoxidation in einer strahlungsbedingten kälteren Stratosphäre (nicht durch Abbildung gezeigt) erklären sowie durch die temperaturbedingte stratosphärische Chlorabnahme (siehe Abbildung 7.6 a), welche zu einem abgeschwächten Methanabbau über Cl führt (siehe Abschnitt 6.1.2). Wie bereits im vorangegangenen Kapitel erläutert sind aufgrund der festgeschriebenen Bodenkonzentrationen nur geringe Methanänderungen in der Troposphäre zu verzeichnen.

Wirken zusätzlich chemische Rückkopplungen (Abbildung 7.8 b) zeigt sich eine stärkere signifikante Methanzunahme in der mittleren Stratosphäre als im reinen Emissionsexperiment (ein Signifikanztest ist in Abbildung A5 des Anhangs zu finden). Dies ist durch die stärkere Abkühlung der Stratosphäre im gekoppeltem System erklärbar. Der indirekte Effekt durch die Klimaänderung wird nun in Abbildung 7.8 c dargestellt. Eine geringe signifikante Zunahme ist in der mittleren Stratosphäre zu verzeichnen, infolge der stratosphärischen Abkühlung.¹² Unterschiede sind zu dem CO₂-angetriebenen Experiment in Abbildung 7.8 (d) zu erkennen: Hier ist eine stärkere positive Methanänderung zu verzeichnen, die in fast in der gesamten Stratosphäre signifikant ist.¹³ Wie bereits diskutiert, induziert in diesem

¹¹Die Gründe für die stark unterschiedliche CO-Änderung (siehe Abbildung 7.3 c und d) konnten im Rahmen dieser Arbeit nicht geklärt werden. Vermutlich verursacht der unterschiedlich chemische Hintergrund im emissionsangetriebenen Experiment (bedingt durch die hohe Skalierung der anthropogenen NO_x- und CO-Emissionen) ein anderes chemisches Regime, in dem eine andere CO-Abbaurate zu verzeichnen ist.

¹²Signifikanztest in Abbildung A6 des Anhangs.

¹³Signifikanztest in Abbildung A2 des Anhangs.

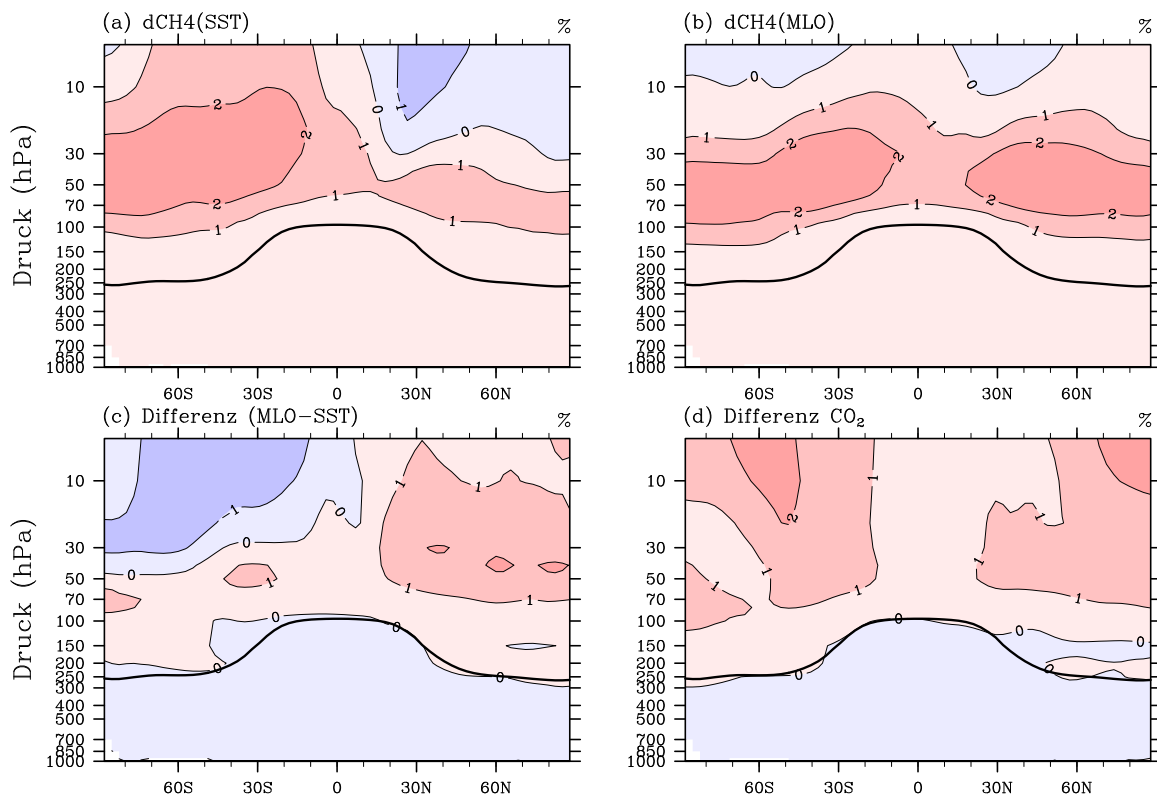


Abbildung 7.8: Zonalmittel (Jahresmittel) der relativen Änderung des Methanmischungsverhältnisses auf Grund einer Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen (in % Volumemischungsverhältnis im Bezug auf ungestörte Referenzsimulation) (a) im Experiment mit vorgeschriebener SST und (b) im Experiment mit gekoppeltem Ozean. Abbildung c zeigt die Responseänderung des Methanmischungsverhältnisses infolge interaktiv gekoppelter Chemie (Differenz der oben gezeigten Abbildungen) und stellt sie der Responseänderung des 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment gegenüber (Abbildung d). Die schwarze Linie markiert jeweils die Lage der Tropopause des Referenzexperimentes.

Experiment die CO_2 -Erhöhung eine mit der Höhe zunehmende stratosphärische Abkühlung, während sich gleichzeitig auch das Tropical-upwelling verstärkt.

Analog zu den oben beschriebenen Methanänderungsmustern werden die Lachgasänderungsmuster in Abbildungen 7.9 a-d zusammengefasst. Durch die Erhöhung der NO_x - und CO -Emissionen kommt es zu einer signifikanten prozentualen Zunahme von Lachgas in der mittleren südlichen Stratosphäre (Abbildung 7.9 a). Sie ist durch die abgeschwächte Photolyse von N_2O erklärbar. Die prozentuale Abnahme in der nördlichen Stratosphäre ist wiederum nicht signifikant.¹⁴ In der Troposphäre ändert sich Lachgas wegen der festen Randbedingungen für die Bodenkonzentrationen kaum.

¹⁴Signifikanztest in Abbildung A4 des Anhangs.

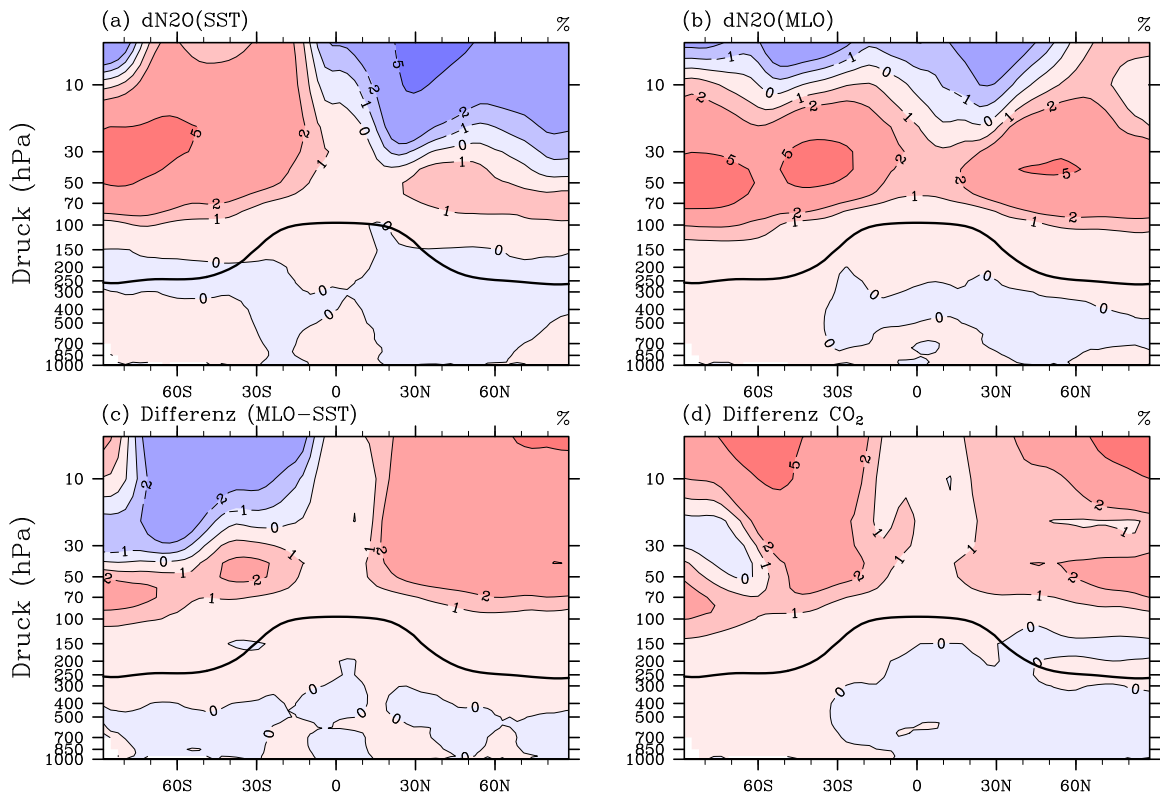


Abbildung 7.9: Zonalmittel (Jahresmittel) der relativen Änderung des Lachgasmischungsverhältnisses auf Grund einer Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO_2 -Emissionen (in % Volumemischungsverhältnis im Bezug auf ungestörte Referenzsimulation) (a) im Experiment mit vorgeschriebener SST und (b) im Experiment mit gekoppeltem Ozean. Abbildung c zeigt die Responseänderung des Lachgasmischungsverhältnisses infolge interaktiv gekoppelter Chemie (Differenz der oben gezeigten Abbildungen) und stellt sie der Responseänderung des 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment gegenüber (Abbildung d). Die schwarze Linie markiert jeweils die Lage der Tropopause des Referenzexperimentes.

Die Änderung des Lachgasresponses im voll gekoppelten System (Abbildung 7.9 c) zeigt signifikante positive Werte in der unteren Stratosphäre.¹⁵ Genau wie im Methanänderungsmuster ist der Grund die stärkere Abkühlung der Stratosphäre in der Erhöhungssimulation mit gekoppeltem Ozean. Die Unterschiede zum CO_2 -angetriebenem Experiment lassen sich wieder durch das CO_2 -induzierte Abkühlungsmuster der Stratosphäre und das verstärkte Tropical-upwelling erklären (siehe Abbildung 7.9 d).

¹⁵Signifikanztest in Abbildung A5 des Anhangs.

7.2 Response und Responseänderung ausgewählter physikalischer Parameter

7.2.1 Temperatur

Die Darstellungsweise des Responses und der Responseänderung in physikalischen Parametern, die im Folgenden vorgestellt werden, ist ein wenig anders als im Fall der im vorangegangenen Abschnitt gezeigten Änderungsmuster chemischer Spurengase (siehe Abbildung 7.10). Das jeweilige Teilbild a beschreibt hier den Response des Klimaänderungsexperimentes ohne Chemie, das wie bereits in Kapitel 4 beschrieben, durch ein Vorschreiben der geänderten strahlungsaktiven Gase aus dem skalierten Emissionsexperiment mit fester SST angetrieben wird (siehe auch Tabelle 4.1, $\text{NOX}/\text{CO}_{\text{MLO,uncoup}}$). Teilbild b zeigt dann den Response im Erhöhungsexperiment mit interaktiv gekoppelter Chemie und Teilbild c die Differenz zwischen der Simulation mit und ohne Chemie, also die Responseänderung aufgrund der Anwesenheit chemischer Rückkopplungen. Diesem wird in Teilbild d die Responseänderung des CO_2 -angetriebenen Erhöhungsexperiment gegenübergestellt.

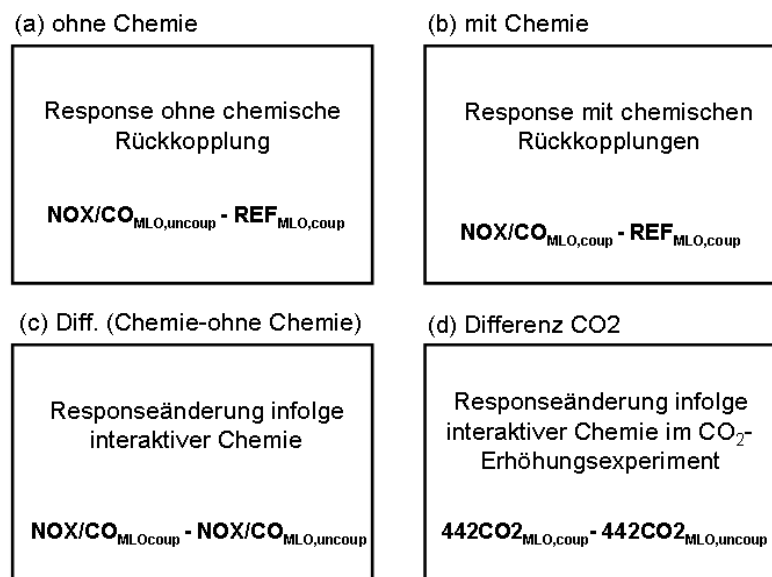


Abbildung 7.10: Schematische Beschreibung der im Folgenden dargestellten Abbildungen physikalischer Responsemuster für das durch NO_x - und CO-Emissionen angetriebene Erhöhungsexperiment. Teilbild a zeigt den Response des Erhöhungsexperimentes ohne Chemie, Teilbild b den Response des Erhöhungsexperiment mit Chemie, Teilbild c die Differenz des Experimentes mit und ohne Chemie. Teilbild d ermöglicht den Vergleich mit dem 442-pmmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment. Experimentabkürzungen sind in Tabelle 4.1 zu finden.

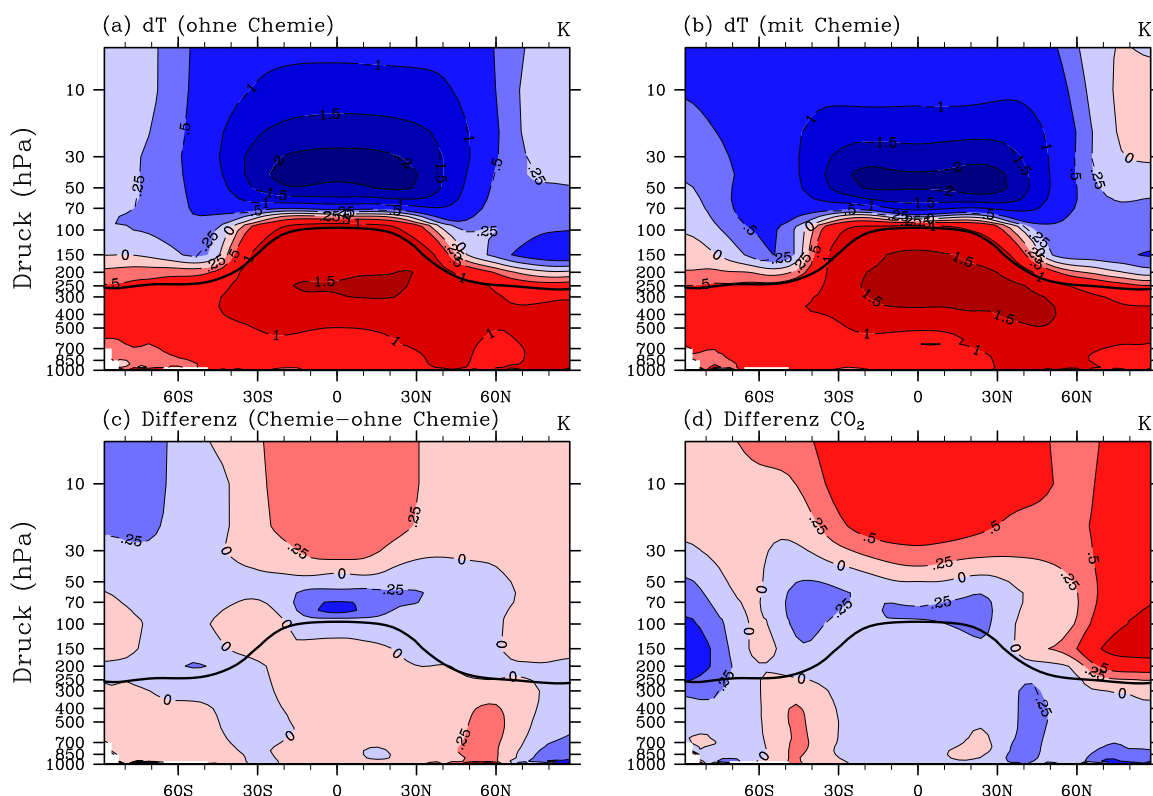


Abbildung 7.11: Zonalmittel (Jahresmittel) des Gleichgewichttemperaturresponses (in K) für eine Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen (a) im Experiment ohne und (b) im Experiment mit interaktiver Chemie. (c) zeigt die Differenz zwischen den zwei emissionsangetriebenen Änderungsmustern. (d) stellt die Differenz des CO_2 -angetriebenen Erhöhungsexperiment von gleicher Antriebsstärke dar.

Abbildungen 7.11 a und b stellen das zonal gemittelte Jahresmittel des Temperaturresponses (in K) für das NO_x - und CO -Erhöhungsexperiment ohne und mit Chemierückkopplungen dar. Der Temperaturresponse in der Simulation ohne Chemie ist gekennzeichnet durch eine Erwärmung der Troposphäre und eine Abkühlung der Stratosphäre. Die Troposphäre erwärmt sich infolge der hier stattfindenden guten Durchmischung relativ homogen. Das Erwärmungsmuster ist hier dem aus der entsprechenden CO_2 -Erhöhungssimulation ähnlich. Die Abkühlung der Stratosphäre hingegen ist durch eine maximale Abkühlung in der unteren tropischen Stratosphäre und einer abnehmenden Abkühlung in der mittleren Stratosphäre sowie einer geringen Abkühlung in den hohen Breiten der Stratosphäre gekennzeichnet (Abbildung 7.11 a). Die Zunahme des als Treibhausgas wirkenden Ozons in der Troposphäre (Abbildung 7.5 a) ist für die troposphärische Erwärmung und stratosphärische Abkühlung verantwortlich. Es ist deutlich zu erkennen, dass oberhalb des troposphärischen Ozonmaximums eine maximale Abkühlung und unterhalb eine maximale Erwärmung stattfindet. Zusätzlich bewirkt die Ozonzunahme durch Absorption kurzwelliger Strahlung eine Erwärmung in fast in der gesamten Atmosphäre. Dieser Erwärmung wird in der Stratosphäre jedoch durch den negativen langwelligen Strahlungseffekt überkompensiert. Der Vergleich mit dem typischen CO_2 -Temperaturresponsemuster (am Beispiel eines CO_2 -Verdoppelungsexperimentes in Ab-

bildung 6.5 a zu sehen) treten deutliche Unterschiede im stratosphärischen Abkühlungsmuster auf. Im Falle der CO_2 -Erhöhung verstärkt sich die Temperaturabnahme mit der Höhe, bis zum Modelloberrand. Diese Unterschiede in der Änderung des vertikalen Temperaturprofils beeinflussen die Stabilität der Stratosphäre. In der CO_2 -Simulation kommt es dadurch zu einer Destabilisierung der Stratosphäre und in der emissionsangetriebenen Simulation hingegen zu einer Stabilisierung, was wiederum die hier nicht stattfindende Verstärkung des Tropical-upwellings erklärt (nicht durch Abbildung gezeigt).

Abbildung 7.11 c zeigt die Änderung des Temperaturresponses aufgrund chemischer Rückkopplungen, welche durch die Differenz zwischen dem Klimaänderungsexperiment mit Chemie und ohne Chemie bestimmt ist. Eine signifikante zusätzliche Abkühlung in der unteren tropischen Stratosphäre und eine signifikante Verringerung der Abkühlung in der mittleren tropischen Stratosphäre sind zu verzeichnen.¹⁶ Der Vergleich mit der in Abbildung 7.11 d dargestellten Änderung des Temperaturresponses infolge einer CO_2 -Erhöhung zeigt, dass die Temperaturabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre in beiden Fällen auf die dort in den Modellen mit interaktiver Chemie stattfindende Ozonabnahme (Abbildung 7.11 c und d) zurückzuführen ist. Ursache für die signifikante Temperaturzunahme in der mittleren tropischen Stratosphäre im emissionsangetriebenen Experiment ist die oberhalb der Ozonabnahme stattfindende langwellige Erwärmung. Die Temperaturabnahme in der mittleren antarktischen Stratosphäre, die sich meist als nicht signifikant erweist, ist durch die dort stattfindende relativ starke Wasserdampfabnahme (siehe 7.12 c) bedingt. Das CO_2 -Erhöhungsexperiment in Abbildung 7.11 d zeigt eine stärkere Temperaturzunahme in der mittleren tropischen Stratosphäre, da hier zusätzlich zum positiven langwelligem Strahlungseffekt durch die Ozonabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre eine starke Erwärmung durch den positiven kurzwelligen Strahlungseffekt, bedingt durch die signifikante Ozonzunahme in der mittleren Stratosphäre (Abbildung 7.5 d) zu verzeichnen ist. Auch in den nördlichen hohen Breiten der Stratosphäre ist dieser, durch eine Ozonzunahme bedingte, positive kurzwellige Strahlungseffekt zu sehen. Die Abkühlung in der unteren südlichen Stratosphäre der hohen Breiten ist durch die dort stattfindende Ozonabnahme erklärbar. In der Troposphäre wird in beiden Fällen (der Emissions- und CO_2 -angetriebenen Simulation) der Temperaturresponse durch die zusätzlichen chemischen Rückkopplungen nur geringfügig verändert und ist im zonalen Mittel meist nicht signifikant.¹⁷

7.2.2 Wasserdampf

Die oben gezeigte Änderung in der Temperatur hat wieder einen Einfluss auf den Wasserdampf (siehe Abschnitt 6.2). Abbildungen 7.12 a und b fassen den zonalen Response des Wasserdampfes im NO_x - und CO-Emissionsexperiment mit und ohne interaktive Chemie zusammen. Dargestellt werden jeweils die Änderungen in % relativ zum dazugehörigen Referenzexperiment (also relativ zum Referenzexperiment ohne Chemie bzw. relativ zum Referenzexperiment mit Chemie, das Referenzexperiment mit Chemie hat zusätzlich

¹⁶Signifikanztest in Abbildung A7 des Anhangs.

¹⁷Signifikanztest in Abbildung A3 des Anhangs.

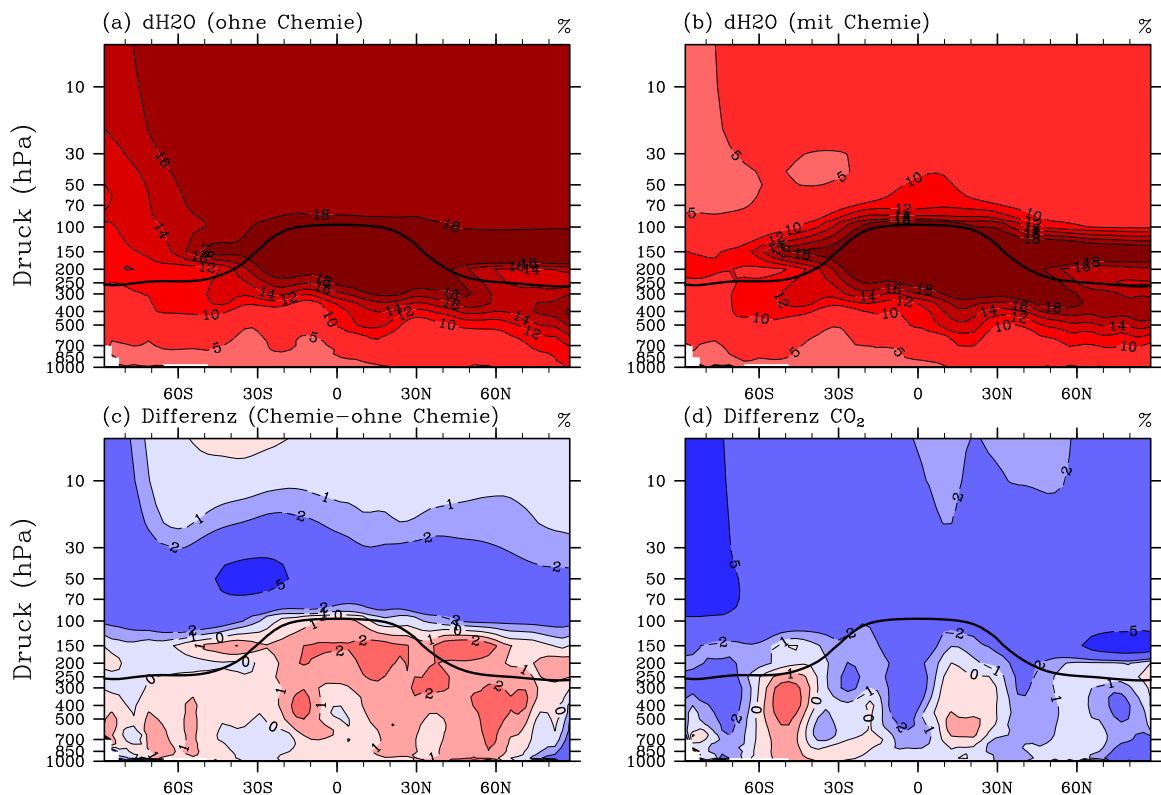


Abbildung 7.12: Zonalmittel (Jahresmittel) der Wasserdampfänderung (in % relativ zum Referenzexperiment ohne Chemie) für eine Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen (a) im Experiment ohne und (b) im Experiment mit interaktiver Chemie. (c) zeigt die Differenz zwischen den zwei emissionsangetriebenen Änderungsmuster. (d) stellt die Differenz des CO_2 -angetriebenen Erhöhungsexperiment von gleicher Antriebsstärke dar.

eine Quelle für stratosphärischen Wasserdampf durch die Methanoxidation und daher eine erhöhte Wasserdampfhintergrundkonzentration).¹⁸ In beiden Experimenten kommt es zu einer starken signifikanten Zunahme des Wasserdampfmischungsverhältnisses in der gesamten Atmosphäre. Diese ist, wie im Kapitel 6 bereits ausführlich beschrieben, im Falle der troposphärischen Wasserdampfung durch die Erwärmung der Troposphäre bei nahezu konstanter relativen Feuchte und im Falle der stratosphärischen Wasserdampfung durch die Zunahme der tropischen Coldpoint-Temperatur bedingt (siehe Abbildung 7.13 a).

Abbildung 7.12 c stellt dann die Wasserdampfresponseänderung bei Berücksichtigung der emissionsbedingten Klimaänderung dar, wobei hier die absolute Differenz zwischen dem Experiment mit und ohne Chemie gebildet und in Relation zum Referenzexperiment mit Chemie gestellt wird. Damit entspricht das in Abbildung c dargestellte Änderungsmuster nicht die Differenz der Abbildungen 7.12 a und b. Eine geringere Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfes (Abbildung 7.12 c) im Falle der Simulation mit interaktiv gekoppelter Chemie ist durch die geringere Zunahme der Coldpoint-Temperatur in diesem Experiment

¹⁸Der absolute Response im Wasserdampfmischungsverhältnis ist in Abbildung A8 des Anhangs zu finden.

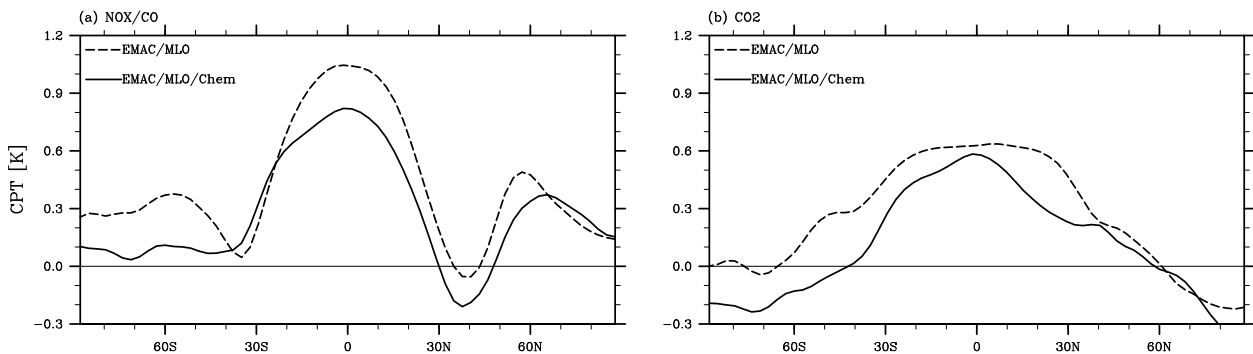


Abbildung 7.13: Zonaler Response der Coldpoint-Temperatur in Folge neunfach erhöhter anthropogener NO_x - und CO -Emissionen (Abbildung a) und in Folge einer Erhöhung der CO_2 -Konzentrationen auf 442 ppmv (Abbildung b). Der Response mit interaktiver Chemie (durchgezogene Linie) und der Response ohne Chemie (gestrichelte Linie) sind jeweils dargestellt.

hervorgerufen (Abbildung 7.13 a). Eine starke, signifikante Wasserdampfabnahme¹⁹ ist in der unteren Stratosphäre zu finden. In der mittleren Stratosphäre hingegen ist nur eine schwache, meist nicht signifikante Abnahme des Wasserdampfresponses zu verzeichnen, da die Wasserdampfabnahme hier durch die im Experiment mit Chemie stattfindende Bildung von Wasserdampf durch Methanoxidation, die mit zunehmender Höhe an Bedeutung gewinnt, modifiziert ist. Der Wasserdampfresponse in der Troposphäre ist bei Berücksichtigung von chemischen Wechselwirkungen leicht erhöht, da diese Werte jedoch größtenteils statistisch nicht signifikant sind, ist hier keine Interpretation möglich.²⁰

Der Vergleich mit dem CO_2 -angetriebenem Klimaänderungsexperiment in Abbildung 7.12 d zeigt auch in diesem eine signifikante Abnahme des Wasserdampfresponses in der Stratosphäre, was sich wiederum durch die geringere Zunahme der Coldpoint-Temperatur erklären lässt (siehe Abbildung 7.13 b, die Änderung in der CPT ist im CO_2 -Experiment etwas kleiner). Die zonalen Struktur der stratosphärischen Wasserdampfänderung weist aber Unterschiede auf. So findet sich die geringere relative Abnahme des Wasserdampfes in der mittleren Stratosphäre, die im emissionsangetriebenen Experiment zu sehen ist, im CO_2 -Experiment nicht wieder. Da die Abkühlung der mittleren Stratosphäre im CO_2 -Erhöhungsexperiment größer ist, verläuft die temperaturabhängige Methanoxidation (siehe Reaktion 2.16) hier langsamer. Somit hat im CO_2 -angetriebenen Klimaerwärmungsexperiment die Methanoxidation einen geringeren Einfluss auf die Wasserdampfresponseänderung.

¹⁹Signifikanztest in Abbildung A7 des Anhangs.

²⁰Signifikanztest in Abbildung A7 des Anhangs.

7.3 Chemische bedingte Strahlungsrückkopplungen

7.3.1 Strahlungsrückkopplung von strahlungsaktiven Gasen

Analog zu Kapitel 6 werden im Folgenden die Rückkopplungen strahlungsaktiver Spurengase im emissionsangetriebenen Klimasensitivitätsexperiment vorgestellt. Die Bestimmung der durch interaktive Chemie hervorgerufenen Strahlungsrückkopplungen ist hier etwas komplizierter als im CO_2 -Experiment, da chemisch aktive Gase in diesem Fall auch den Strahlungsantrieb auslösen. In Tabelle 7.1 werden die normierten Strahlungsantriebe für das Emissionserhöhungsexperiment mit fester SST sowie für das Emissionserhöhungsexperiment mit gekoppeltem Ozean gezeigt. Der für das Ozonänderungsmuster (Abbildung 7.5 a und b) berechnete Strahlungsantrieb wird auf die jeweilige Änderung der globalen Bodentemperatur normiert (normierter Strahlungsantrieb: $RF(\Delta\text{O}_3)/\Delta T_{surf}$). Im Fall des Erhöhungsexperimentes mit fester SST wird der Ozonstrahlungsantrieb auf die Änderung der globalen Bodentemperatur des Experimentes ohne Chemie ($\text{NOX}/\text{CO}_{MLO,uncoup}$) normiert (0.76 K), da dieses vom Ozonänderungsmuster des Erhöhungsexperimentes mit fester SST angetrieben wird. Der normierte Strahlungsantrieb wird, der Einheit ($\text{Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) wegen, ebenfalls, wie der Rückkopplungsparameter, mit α bezeichnet. Das voll gekoppelte Klimaänderungsexperiment ($\text{NOX}/\text{CO}_{MLO,coup}$) wird hingegen von der Ozonänderung aus Abbildung 7.5 b angetrieben. Der hieraus resultierende Strahlungsantrieb wird durch die Änderung der globalen Bodentemperatur des Experimentes mit Chemie (0.69 K) geteilt. Die Differenz dieser normierten Strahlungsantriebe ergibt die chemischen Rückkopplungsparameter des emissionsangetriebenen Erwärmungsexperimentes. Die Rückkopplung über Ozon stellt mit $-0.166\text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ die stärkste chemische Rückkopplungskomponente dar. Die Strahlungsrückkopplungen über Methan und Lachgas sind wieder vernachlässigbar und werden aus diesem Grund nicht in die Tabelle mitaufgenommen. Im Gegensatz zum CO_2 -Verdoppelungsexperiment (siehe Tabelle 6.1, Kapitel 6) dominiert in dieser Simulation die Rückkopplung über troposphärisches Ozon ($-0.116\text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) und jene über stratosphärisches Ozon ($-0.048\text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) wird relativ unbedeutender.

Abbildung 7.14 stellt den zonalen Verlauf der Ozonstrahlungsrückkopplung an der Tropopause für die kurzwellige, langwellige sowie die Nettokomponente im NO_x - und CO -Emissionserhöhungsexperiment dar. Gezeigt wird der Strahlungsrückkopplungsparameter des Gesamt Ozons (Abbildung 7.14 a), des troposphärischen Ozons (Abbildung 7.14 b) und des stratosphärischen Ozons (Abbildung 7.14 c). Die kurzwellige Strahlungsrückkopplung des Gesamt Ozons ist sehr klein, der langwellige Anteil dominiert und ist durchgehend negativ mit den betragsmäßig kleinsten Werten in den südlichen niederen Breiten und betragsmäßig größten Werten in den nördlichen Subtropen.

Das zonale Profil des kurzwelligen Ozonrückkopplungsparameters ist begründet durch die Ozonabnahme in der Troposphäre (siehe Abbildung 7.5 c), welche eine negative kurzwellige Strahlungsrückkopplung verursacht und durch die Ozonabnahme der Stratosphäre, die eine positive kurzwellige Strahlungsrückkopplung verursacht. Abbildung 7.14 b bestätigt den negativen Verlauf im Kurzwelligen für die troposphärische Ozonänderung und die positi-

Tabelle 7.1: Normierter Strahlungsantrieb α (auf die jeweilige Änderung der globalen Bodentemperatur) im NO_x- und CO-angetriebenen Erhöhungsexperimentes ohne und mit Chemie. Die Differenz des normierten Strahlungsantriebs beschreibt den chemischen Rückkopplungsparameter α . Im Falle von Wasserdampf ist der Rückkopplungsparameter bzw. die Änderung des Rückkopplungsparameters infolge interaktiver Chemie gezeigt.

	NOX/CO _{SST,coup} [Wm ⁻² K ⁻¹]	NOX/CO _{MLO,coup} [Wm ⁻² K ⁻¹]	Differenz [Wm ⁻² K ⁻¹]
$\alpha(\text{O}_3)$	1.555	1.308	-0.166
$\alpha(\text{O}_3, \text{tropo})$	1.345	1.229	-0.116
$\alpha(\text{O}_3, \text{strato})$	0.241	0.193	-0.048
$\alpha(\text{H}_2\text{O})$	2.924	2.860	-0.064
$\alpha(\text{H}_2\text{O}, \text{tropo})$	2.649	2.626	-0.023
$\alpha(\text{H}_2\text{O}, \text{strato})$	0.278	0.238	-0.040

ven Werte im Kurzwelligen für die stratosphärische Ozonänderung (Abbildung 7.14 c). So kompensieren sich die negative Strahlungsrückkopplung über troposphärisches Ozon und die positive über stratosphärisches Ozon und führen zu einer geringen Gesamtozonrückkopplung im Kurzwelligen.

Der zonale Verlauf der langwelligen Komponente des Ozonrückkopplungsparameters ist sowohl durch die troposphärische als auch die stratosphärische Ozonabnahme auf Grund der chemischen Rückkopplungen (Abbildung 7.5 c) bestimmt. So zeigt Abbildung 7.14 b, dass die negative langwellige Strahlungsrückkopplung des Gesamtozons von der troposphärischen Strahlungsrückkopplung stark beeinflusst wird. Aber auch die stratosphärische Ozonabnahme führt zu einer negativen langwelligen Strahlungsrückkopplung (siehe Abbildung 7.14 c) und verstärkt damit die negative langwellige Strahlungsrückkopplung des Gesamtozons.

7.3.2 Strahlungsrückkopplungsänderung von Wasserdampf

Der Tabelle 7.1 ist auch der Rückkopplungsparameter von Wasserdampf für das Experiment mit und ohne Chemie zu entnehmen. Er wird wiederum durch die Differenz der Rückkopplungen in der Simulation mit und ohne interaktive Chemie bestimmt. Der betreffende Wasserdampfrückkopplungsparameter im Experiment mit Chemie ist etwas kleiner und es ergibt sich eine negative Änderung des Wasserdampfrückkopplungsparameters um $-0.064 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$. Die Änderung im stratosphärischen Wasserdampfrückkopplungsparameter ($-0.040 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) dominiert die des troposphärischen Wasserdampfrückkopplungsparameters ($-0.023 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$). Auch hier ist infolge der nicht signifikanten Responseänderung von troposphärischem Wasserdampf (siehe Abbildung A7 im Anhang dieser Arbeit) die berechnete Rückkopplungsparameteränderung von Wasserdampf qualitativ nicht belastbar.

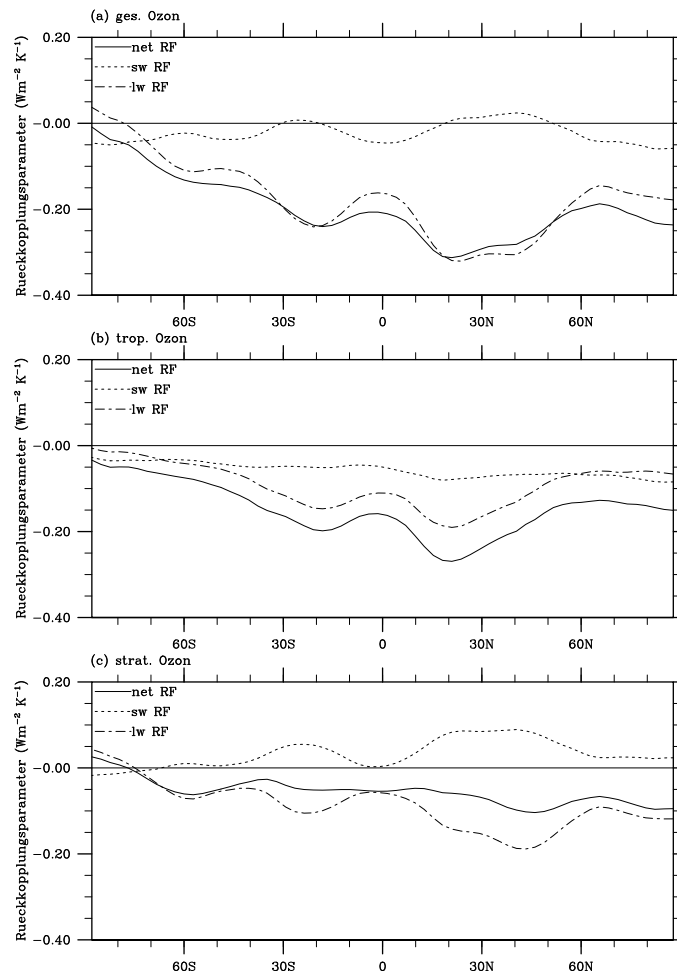


Abbildung 7.14: Zonalmittel des Ozonstrahlungsrückkopplungsparameters α_{03} . Gezeigt sind kurzwellige, langwellige und netto Komponente für (a) das Gesamtozon, (b) das troposphärische Ozon und (c) das stratosphärische Ozon im Erhöhungsexperiment mit 9-fach erhöhten anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen.

7.4 Zusammenfassung der Strahlungsrückkopplung in allen Erhöhungsexperimenten

Die Tabellen 6.1, 6.2 und 7.1 fassen die Strahlungsrückkopplungsparameter aller in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Erhöhungsexperimente zusammen. Der Vergleich der Rückkopplungsparameter des Experimentes mit erhöhten CO_2 -Konzentrationen und des Experimentes, das durch NO_x - und CO-Emissionen angetrieben wird, lässt erkennen, dass beide Erhöhungsexperimente eine negative Ozonrückkopplung aufweisen, wobei die Ozonrückkopplung im emissionsangetriebenen Experiment betragsmäßig deutlich größer ($-0.166 \text{ Wm}^{-2} \text{ K}^{-1}$) als die des CO_2 -Verdoppelungsexperimentes ($-0.023 \text{ Wm}^{-2} \text{ K}^{-1}$) ist. Die negative Ozonrückkopplung wird im Emissionserhöhungsexperiment dominiert durch die Rückkopplung über troposphärisches Ozon ($-0.116 \text{ Wm}^{-2} \text{ K}^{-1}$). Im CO_2 -Erhöhungsexperiment liefert dagegen die Rückkopplung über stratosphärisches Ozon ($-0.031 \text{ Wm}^{-2} \text{ K}^{-1}$) den höheren Anteil. In

beiden Experimenten lässt sich eine Abnahme des Rückkopplungsparameters über stratosphärischen Wasserdampf von gleicher Größenordnung feststellen. Wie bereits erwähnt ist die in beiden Simulationen nicht signifikante Änderung des troposphärischen Wasserdampfresponses dafür verantwortlich, dass der berechnete Wert der troposphärischen Wasserdampfrückkopplungsänderung nicht mit hinreichendem Vertrauen interpretiert werden kann.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Stärke eines Rückkopplungsmechanismus von der Antriebsart abhängig sein kann und somit unterschiedlich starke Rückkopplungsparameter im emissions- und CO_2 -angetriebenen Erhöhungsexperiment auftreten. Dies ist qualitativ verständlich, da durch eine globale Erwärmung hervorgerufene Rückkopplungen anders auf die chemischen Spurengase wirken, wenn diese selber durch den primären Antrieb verändert wurden. Des Weiteren zeigen sich auch für eine geänderte Antriebsstärke (CO_2 -Erhöhungsexperimente, siehe Kapitel 6) unterschiedliche Rückkopplungsparameter. Diese Empfindlichkeit der Rückkopplungen von Detail des Antriebsmechanismus führt zu Nichtlinearitäten und bedeutet eine weitere schwerwiegende Herausforderung für das Konzept der konstanten Klimasensitivität (siehe Kapitel 2). Um jedoch einen tieferen Einblick in alle wirkenden Rückkopplungen zu bekommen sowie die Änderung physikalischer Rückkopplungskomponenten infolge interaktiver Chemie zu bestimmen, bedarf es einer kompletten Rückkopplungsanalyse. Nur so ist die Sensitivität aller Strahlungswirkungen und -rückkopplungen gegenüber den unterschiedlichen Antriebsmechanismen abschließend zu bewerten, was im folgenden Kapitel deutlich wird.

Kapitel 8

Klimasensitivität im Klima-Chemie-Modellsystem

Die Summe aller im Modellsystem wirkenden Rückkopplungen bestimmt die Klimasensitivität dieses Systems (siehe Kapitel 2). In den durchgeführten Sensitivitätsstudien mit interaktiv gekoppelter Chemie wirken neben den physikalischen Rückkopplungen auch chemische Rückkopplungen. Inwieweit letztere die Klimasensitivität in CO₂-Erhöhungsexperimenten beeinflussen, wird in Abschnitt 8.1 beschrieben. Abschnitt 8.2 stellt den im Modellsystem ohne Chemie bei einer CO₂-Versechsfachung auftretenden 'Runaway Greenhouse Effect' vor und untersucht die Frage, ob das interaktiv gekoppelte Klima-Chemie-Modell diesen unterbinden kann. Des Weiteren wird der Einfluss der interaktiven Chemie auf die Klimasensitivität in emissionsangetriebenen Sensitivitätsexperimenten untersucht (Abschnitt 8.3). Den Abschluss dieses Kapitels liefert Abschnitt 8.4, in dem die vorgestellten Ergebnisse diskutiert und bewertet werden.

8.1 Klimasensitivität in CO₂-Erhöhungsexperimenten

In Kapitel 6 wurden die im Klima-Chemie-Modell wirkenden Rückkopplungen über die strahlungsaktiven Gase in CO₂-Erhöhungsexperimenten zusammengefasst. Diese chemischen Rückkopplungen nehmen, wie in Abschnitt 2.1.2 dargelegt, Einfluss auf die Größe der Klimasensitivität. Dieser wird im Folgenden näher beschrieben und quantifiziert.

In Abbildung 8.1 ist die zeitliche Entwicklung der globalen bodennahen Lufttemperatur (Temperatur in einer Höhe von 2 m) in Folge einer CO₂-Verdoppelung (Strahlungsantrieb 4.13 Wm^{-2}), relativ zum globalen und zeitlichen Mittelwert des Referenzexperimentes für das Experiment mit und ohne interaktive Atmosphärenchemie, dargestellt. Die Kurve des Referenzexperimentes zeigt die Schwankungen der Monatsmittel um ihren langzeitlichen Mittelwert. Die Änderung in der globalen Bodentemperatur infolge einer CO₂-Verdoppelung erreicht ihr neues Gleichgewicht nach einer Einschwingphase von etwa 20 Modelljahren sowohl

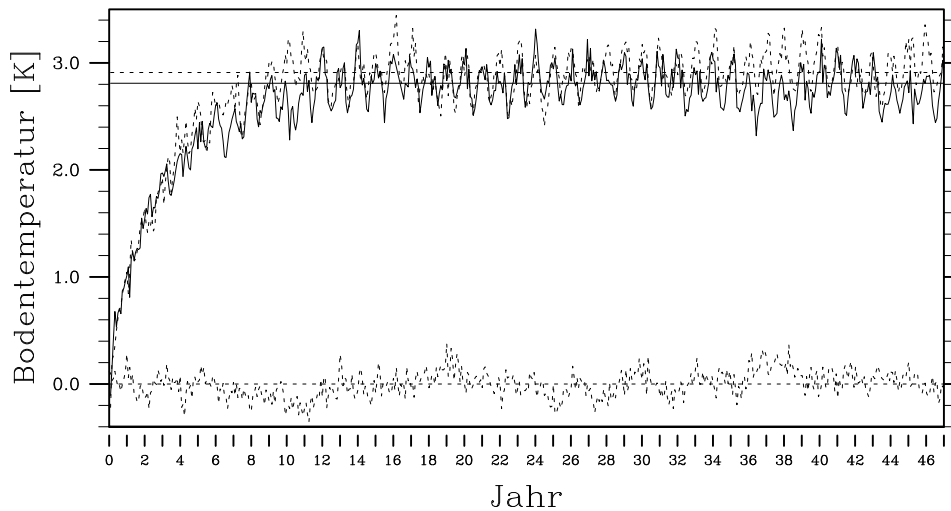


Abbildung 8.1: Zeitliche Entwicklung der global gemittelten Änderung der bodennahen Lufttemperatur in einer 2^*CO_2 -Erhöhungssimulation mit gekoppelter (—) und ohne gekoppelte Chemie (- -). Waagrechte Linien markieren den globalen langjährigen Mittelwert der Simulation im neu erreichten Gleichgewicht. Die Referenzsimulation (- -) zeigt Schwankungen der Monatsmittel um ihren langjährigen Mittelwert.

im Sensitivitätsexperiment mit (durchgezogene Linie) als auch ohne (gestrichelte Linie) chemische Rückkopplungen. In waagrechten Linien ist zusätzlich der Gleichgewichtsresponse der global und jährlich gemittelten bodennahen Lufttemperatur eingezeichnet (ermittelt aus den letzten 25 Simulationsjahren). Er ist im Experiment mit interaktiven chemischen Rückkopplungen geringer (2.71 K) als im Experiment ohne Chemie (2.81 K). Somit ist die Klimasensitivität durch das zusätzliche Wirken von chemischen Rückkopplungen reduziert. Die relative Differenz in der Klimasensitivität ist zwar mit etwa -4% klein, aber statistisch signifikant auf dem 95%-Niveau. Grund für die Dämpfung der Klimasensitivität sind die negativen Rückkopplungen über die Chemie, die im Detail in Kapitel 6 erläutert wurden. Aus Tabelle 6.1 (siehe Kapitel 6) geht hervor, dass die wichtigste chemische Strahlungsrückkopplung im CO_2 -Verdoppelungsexperiment die negative Strahlungsrückkopplung über Ozon ist ($\alpha = -0.022 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$), wobei dieser negative Wert hauptsächlich auf die Strahlungsrückkopplung über stratosphärisches Ozon ($\alpha = -0.031 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) zurückzuführen ist. Außerdem ändert sich der Wasserdampfrückkopplungsparameter durch chemische Rückkopplungsmechanismen um $-0.027 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$, was zu einer weiteren Dämpfung der Klimasensitivität führt. Auch hier ist zum größten Teil die Änderung in der stratosphärischen Wasserdampfrückkopplung ($\alpha = -0.034 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) verantwortlich.

Wie in Kapitel 6 bereits kurz dargestellt, wurden, neben dem CO_2 -Verdoppelungsexperiment, weitere CO_2 -Erhöhungsexperimenten durchgeführt, um die Linearität von Klimasensitivität und Rückkopplungsparameter in Abhängigkeit von der Antriebsstärke zu prüfen. Hierzu zählen ein 442-ppmv-Erhöpfungsexperiment mit einem Strahlungsantrieb von 1.06 Wm^{-2} , ein 4^*CO_2 -Erhöhungsexperiment mit einem Strahlungsantrieb von 8.93 Wm^{-2} und ein 6^*CO_2 -Erhöhungsexperiment mit einem Strahlungsantrieb von 12.17 Wm^{-2} . Tabelle 8.1 fasst die Ergebnisse aller Erhöhungsexperimente (mit und ohne Chemie) für die Änderung der boden-

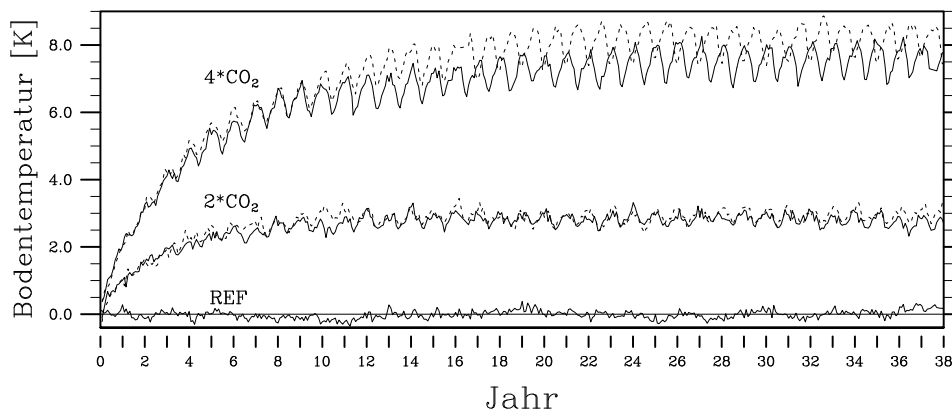


Abbildung 8.2: Zeitliche Entwicklung der global gemittelten Änderung der bodennahen Lufttemperatur in einer 2*CO₂- und einer 4*CO₂-Erhöhungssimulation mit gekoppelter (—) und ohne gekoppelte Chemie (- - -) .

nahen Temperatur, den Klimasensitivitätsparameter, und das 95%-Konfidenzintervall des Klimasensitivitätsparameters zusammen. Das Konfidenzintervall wurde anhand der Standardabweichung von ΔT_{surf} berechnet, weil der Strahlungsantrieb als deterministisch bestimmte Größe gelten kann, der keine statistische Schwankungen aufweist (Stuber, 2001). Da die Zeitreihen der globalen Bodentemperatur eine erhebliche Autokorrelation aufweisen (z.B. an der langperiodischen Variabilitätskomponente der Referenzsimulation in Abbildung 8.1 zu sehen), wurde die Anzahl der Freiheitsgrade auf der Basis einer Autokorrelationsanalyse auf einen Stichprobenumfang von statistisch unabhängigen Werten reduziert (Zwiers und von Storch, 1995). Die folgende Beschreibung der Ergebnisse behandelt nur die 2*CO₂- und 4*CO₂-Erhöhungsexperimente, da das 442-ppmv-Erhöpfungsexperiment hart an der Grenze der Signifikanz ist (siehe auch Konfidenzintervall des Klimasensitivitätsparameters in Tabelle 8.1). Des Weiteren ist in Abbildung 8.2 der zeitliche Verlauf der globalen Bodentemperaturänderung für drei der CO₂-Experimente mit und ohne interaktive Chemie dargestellt. Der Tabelle 8.1 kann entnommen werden, dass die relative Änderung des Klimasensitivitätsparameters aufgrund interaktiver Chemie mit der auslösenden CO₂-Störung zunimmt. Die relative Dämpfung der Klimasensitivität ist im CO₂-Verdoppelungsexperiment (etwa -4%) deutlich geringer als im CO₂-Vervierfachungsexperiment (etwa -8%). Die Zunahme von λ mit steigendem Strahlungsantrieb, wie sie in Tabelle 8.1 ersichtlich ist, widerspricht generell der Theorie des konstanten Klimasensitivitätsparameters. Das heißt, auch die Berücksichtigung chemischer Rückkopplungen löst dieses Problem nicht.

Tabelle 6.2 in Kapitel 6 zeigt, dass in allen CO₂-Erhöhungsexperimenten die Ozonrückkopplung und die Änderung in der Wasserdampfrückkopplung die Klimasensitivität beeinflussen, wobei diese Werte wieder stark von der jeweiligen stratosphärischen Rückkopplungen dominiert sind. Die Rückkopplung über Ozon wird mit zunehmender Störung kleiner (Rückkopplungsstärke von $-0.022 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ im 2*CO₂-Erhöhungsexperiment gegenüber $-0.015 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ im 4*CO₂-Erhöhungsexperiment) und die geänderte Rückkopplung über den Wasserdampf wird größer (Rückkopplungsstärke von $-0.027 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ im 2*CO₂-Erhöhungsexperiment gegenüber $-0.047 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ im 4*CO₂-Erhöhungsexperiment).

Tabelle 8.1: Stratosphären-adjustierter Strahlungsantrieb (RF), Klimaresponse (ΔT_{surf}), Klimasensitivitätsparameter (λ) für verschiedene CO_2 -Störungen und eine emissionsangetriebene Störung, berechnet aus Klimagleichgewichtssimulationen ohne und mit interaktiv gekoppelter Chemie (Abkürzungsbezeichnungen der Simulationen sind in Tabelle 4.1 zu finden). Die für die Simulationen mit interaktiv gekoppelter Chemie berechneten Parameter sind fettgedruckt angegeben. Zusätzlich zum Mittelwert von λ ist das 95%-Konfidenzintervall dargestellt.

Experiment	RF [Wm^{-2}]	ΔT_{surf} [K]	λ [K/Wm^{-2}]	λ 95%-Konf. [K/Wm^{-2}]
442CO2 _{MLO,uncoup}	1.06	0.78	0.73	[0.67;0.79]
442CO2 _{MLO,coup}		0.67	0.63	[0.57; 0.68]
NOX/CO _{MLO,uncoup}	1.22	0.76	0.63	[0.55; 0.67]
NOX/CO _{MLO,coup}		0.84	0.69	[0.65; 0.73]
2*CO2 _{MLO,uncoup}	4.13	2.91	0.70	[0.69; 0.72]
2*CO2 _{MLO,coup}		2.81	0.68	[0.66; 0.69]
4*CO2 _{MLO,uncoup}	8.93	8.13	0.91	[0.90; 0.92]
4*CO2 _{MLO,coup}		7.52	0.84	[0.83; 0.85]
6*CO2 _{MLO,uncoup}	12.17	-	-	-
6*CO2 _{MLO,coup}		15.28	0.80	[0.75; 0.83]

8.2 Runaway-Greenhouse-Effekt

In Simulationen ohne interaktiv gekoppelte Chemie werden Ozon, Methan und Lachgas durch eine vorgeschriebene Klimatologie beschrieben, die nicht auf eine Änderung des Klimas in Folge geänderter CO_2 -Konzentrationen reagieren kann. Die Tropopause hingegen erhöht sich mit zunehmender troposphärischer Temperatur (siehe Abbildung 6.6 a). Durch die erhöhte Lage der Tropopause gelangt stratosphärisches Ozon im Erwärmungsexperiment in die obere Troposphäre, da in Folge der vorgeschriebenen Ozonklimatologie keine interaktive Verschiebung des starken Ozongradienten an der Tropopause stattfinden kann. Die größere Ozonkonzentration in der Troposphäre bewirkt nun eine zusätzliche Erwärmung des Systems Troposphäre-Erdboden. Übersteigt das Erhöhungsexperiment einen kritischen Wert in der Erhöhung der CO_2 -Konzentration, im Falle der Gleichgewichtssimulationen mit EMAC/MLO eine Versechsfachung der CO_2 -Konzentrationen, kommt es durch die oben beschriebene künstliche troposphärische Ozonzunahme zu einem immer größer werdenden Temperaturanstieg. Die global gemittelte bodennahe Temperatur erreicht kein Gleichgewicht im Rahmen der 45 simulierten Jahre (siehe Abbildung 8.3, oberste Kurve). Effekte dieser Art werden als 'Runaway Greenhouse Effect' bezeichnet und sind in anderem Zusammenhang mit dem ECHAM5-Klimamodell bereits berichtet worden (Heinemann, 2009). Es ist zu erwarten, dass Simulationen mit interaktiv gekoppelter Atmosphärenchemie, in denen sich auch das Ozonfeld an das neue Gleichgewicht anpasst, diesen Runaway-Greenhouse-Effekt unterbindet, da innerhalb der Tropopause nur für die Troposphäre typische Ozonwerte auftreten können. Abbildung 8.3 bestätigt diese Erwartung im Falle einer Versechsfachung der CO_2 -Konzentrationen. Es zeigt sich, dass das 6* CO_2 -Experiment mit interaktiven Chemie nach einer Einschwingphase von 25 Jahren ein Gleichgewicht erreicht, bei einer Änderung der globalen Bodentemperatur von 15.28 K. Da der Klimasensitivitätsparameter aber auch in den Erhöhungsexperimenten mit interaktiver Chemie mit zunehmendem Antrieb größer wird

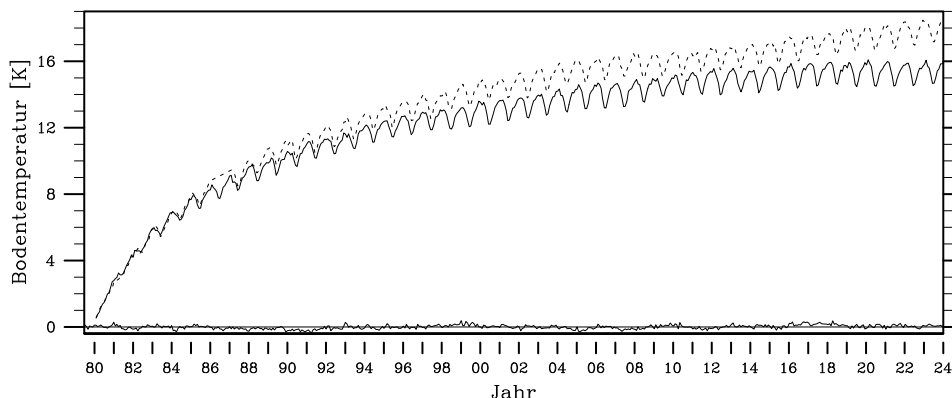


Abbildung 8.3: Zeitliche Entwicklung der global gemittelten Änderung der bodennahen Lufttemperatur in 6^*CO_2 Erhöhungssimulation mit gekoppelter (—) und ohne gekoppelte Chemie (- - -). Die Simulation ohne gekoppelte Chemie erreicht kein Gleichgewicht.

(siehe Tabelle 8.1), ist ein Runaway-Greenhouse-Effekt bei noch höheren Antrieben jedoch nicht ausgeschlossen. Es ist nicht unwahrscheinlich, dass die mit erhöhtem Strahlungsantrieb zunehmende Klimasensitivität und die Möglichkeit eines Runaway-Greenhouse-Effekt zusammenhängen. Im Rahmen dieser Arbeit konnte dieser Zusammenhang und die letztendliche Ursache aber nicht aufgeklärt werden.

8.3 Klimasensitivität in NO_x - und CO -Erhöhungsexperimenten

Neben den CO_2 -Erhöhungsexperimenten wurde ein durch anthropogene NO_x - und CO -Emissionen angetriebenes Erhöhungsexperiment durchgeführt (siehe Kapitel 7). Strahlungsaktive Gase ändern sich im voll gekoppelten Klima-Chemie-Modell mit MLO nicht nur aufgrund der erhöhten Emissionen sondern auch aufgrund der geänderten Klimaparameter. Abbildung 8.4 zeigt den zeitlichen Verlauf der bodennahen Temperaturänderung im Modell mit und ohne interaktive Chemie²¹ für ein Klimaerwärmungsexperiment, in dem die anthropogenen NO_x - und CO -Emissionen um einen Faktor 9 skaliert wurden. Die Klimasensitivität ist im Experiment ohne Chemie mit 0.76 K etwas kleiner als im Experiment mit Chemie (0.84 K), wobei diese Differenz auf dem 95%-Signifikanzniveau nicht signifikant von Null verschieden ist. Die Berücksichtigung chemischer Rückkopplungen führt daher nur zu einer marginal signifikanten Änderung der Klimasensitivität. Die in diesem Erhöhungsexperiment wirkenden Rückkopplungen wurden bereits in Tabelle 7.1 (siehe Kapitel 7) zusammengefasst. Aus dieser Tabelle geht hervor, dass die Rückkopplungsstärke von Ozon mit $-0.166 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ und die Änderung der Rückkopplungsstärke von Wasserdampf mit $-0.064 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ negativ ist. Die berechneten negativen Rückkopplungsparameter infolge interaktiver Chemie stehen somit qualitativ nicht im Einklang mit der positiven Änderung der Klimasensitivität (siehe

²¹Beschreibung der emissionsangetriebenen Simulation ohne Chemie ist in Abschnitt 4.3 zu finden.

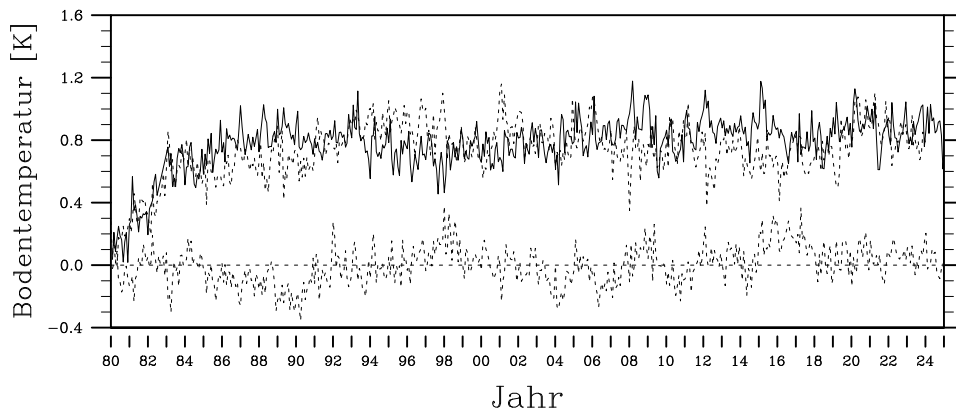


Abbildung 8.4: Zeitliche Entwicklung der global gemittelten Änderung der globalen Bodentemperatur in einer durch NO_x - und CO -angetriebenen Erhöhungssimulation mit gekoppelter (—) und ohne gekoppelter Chemie (- -).

Tabelle 7.1). Das heißt, dass andere Änderungen in physikalischen Rückkopplungen durch interaktive Chemie für dieses positive Änderung verantwortlich sein müssen. So könnte zum Beispiel eine Änderung im Ozonfeld zu einer geänderten Lapse-rate-Rückkopplung führen. Um dieses Ergebnis zu erklären wäre eine vollständige Rückkopplungsanalyse notwendig. Da im Rahmen dieser Arbeit die Stuber-Methode (Abschnitt 2.2) zur Bestimmung von Rückkopplungen angewendet wurde, bei der keine Bestimmung der Wolkenrückkopplung möglich ist, konnte die vollständige Analyse aller physikalischen Rückkopplungsparameter leider nicht durchgeführt werden. So müssen alle Rückkopplungsmechanismen mittels der in Abschnitt 2.2 vorgestellte PRP-Methode bestimmt werden, um den Grund für die positive Änderung der Klimasensitivität zu quantifizieren.

8.4 Diskussion der Ergebnisse

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die zusätzliche Berücksichtigung von chemischen Rückkopplungen in CO_2 -Erhöhungssimulationen einen geringen dämpfenden Effekt auf die Klimasensitivität haben, der umso größer wird, je höher der Antrieb gewählt wird. Bei einer Versechsfachung der CO_2 -Konzentrationen erreicht das Sensitivitätsexperiment mit interaktiver Chemie im Gegensatz zum Sensitivitätsexperiment ohne Chemie ein Gleichgewicht, was damit erklärt werden kann, dass interaktives Ozon einen durch eine festgeschriebene Ozonverteilung bedingte, unrealistisch positive Strahlungsrückkopplung im Tropopausenbereich unterbindet. Allerdings ist nicht klar, ob ein Runaway-Greenhouse-Effekt bei noch größerem Antrieb auftritt (siehe oben).

Auch die Studie von Raes et al. (2010) untersucht den Effekt von Rückkopplungen über die Atmosphärenchemie auf die Klimasensitivität und gelangt zu einem qualitativ ähnlichen Ergebnis. Für eine Erhöhung der Treibhausgase vom Jahr 2000 auf das Jahr 2100 (ausgelöster Strahlungsantrieb von 6.63 W m^{-2}) ergab sich eine Abnahme der Klimasensitivität

um 1% durch die zusätzliche Anwesenheit von chemischen Rückkopplungen. Im Unterschied zu meiner Arbeit werden in Raes et al. (2010) keine chemischen Rückkopplungen über die Stratosphärenchemie berücksichtigt, da das verwendete Modell nur die Troposphärenchemie und die Aerosolchemie umfasst. Doch wie die vorliegende Arbeit zeigt, tragen vor allem die Rückkopplungen über die Stratosphärenchemie wesentlich zur Dämpfung der Klimasensitivität bei. So ist dies ein möglicher Grund, dass die Änderung der Klimasensitivität infolge interaktiver Chemie in Raes et al. (2010) etwas kleiner ausfällt als hier. Des Weiteren beschränkt sich diese Studie auf den Einfluss der zusätzlichen chemischen Rückkopplungen auf die Klimasensitivität ohne die Rückkopplungsstärke dieser chemischen Rückkopplungen zu quantifizieren. Auch auf die Änderung der Wasserdampfrückkopplungen durch interaktiv gekoppelte Chemie, welche, wie die vorliegende Arbeit zeigt, einen wichtigen Beitrag zur Dämpfung der Klimasensitivität liefert, wird in Raes et al. (2010) nicht eingegangen.

Wie in Abschnitt 8.3 erläutert, ändert sich die Klimasensitivität in einem mit interaktiver Chemie gekoppeltem Sensitivitätsexperiment mit 9-fach anthropogen erhöhten NO_x - und CO-Emissionen nicht signifikant. Daraus ist zu folgern, dass Klimasensitivitätssimulationen, die durch Ozonstörungen aus geänderten Emissionen angetrieben werden, nicht unbedingt mit gekoppeltem Klima-Chemie-Modellen durchgeführt werden müssen, um die Klimasensitivität hinreichend gut zu bestimmen. Der herkömmliche Weg, Strahlungsantrieb und Klimaresponse durch den schrittweisen Einsatz von Chemie-Transportmodellen (CTM) und Klimamodellen ohne interaktive Chemie zu bestimmen, liefert ein relativ genaues Ergebnis.

Insgesamt lässt sich feststellen, dass für Gleichgewichtssimulationen mit interaktiver Chemie die lineare Approximation $\Delta T_{surf} = \lambda * RF$ mit konstantem Klimasensitivitätsparameter λ etwas besser erfüllt ist (siehe Tabelle 8.1). Außerdem geht aus Tabelle 8.1 hervor, dass sich die 95%-Konfidenzintervalle von λ für mit Atmosphärenchemie gekoppelte Experimente mit gleicher Antriebsstärke überschneiden. Das 442-ppmv- CO_2 -Erhöhungsexperiment und das durch NO_x - und CO-Emissionen angetriebene Erhöhungsexperiment haben beide einen Antrieb von 1 W m^{-2} und zeigen nur geringe, im Fall des Emissionsexperimentes nicht signifikante Unterschiede in der Klimasensitivität. In früheren Simulationen wurde gefunden, dass Nicht- CO_2 -Störungen, nicht zuletzt Ozonstörungen, leicht eine anormale Klimasensitivität mit sich bringen können. Zum Beispiel finden Stuber et al. (2005) für eine Ozonstörung, die auf die mittlere Troposphäre der Extratropen beschränkt ist, eine Erhöhung der Klimasensitivität um ca. 30%. In der vorliegenden Arbeit ist der Effekt, auch bei nicht interaktiver Chemie, geringer. Grund könnte die glattere und realistischere Struktur der hier verwendeten Ozonstörungen sein (siehe z.B. Ponater, 2009). Genauerem Aufschluss würde auch hier nur eine vollständige Rückkopplungsanalyse erlauben.

Kapitel 9

Zusammenfassung und Ausblick

Die Reaktion des Klimasystems auf eine externe Störung (Strahlungsantrieb) ist außer durch die Stärke des Strahlungsantriebs auch durch die im System wirkenden Strahlungsrückkopplungen bestimmt. Interaktive Klima-Chemie-Modelle bieten eine vollständigere Repräsentation des Klimasystems als herkömmliche Klimamodelle ohne Atmosphärenchemie. So sind in Klima-Chemie-Modellen neben den physikalischen Rückkopplungen zusätzlich Rückkopplungen über die strahlungsaktiven Gase (Ozon, Methan, Lachgas) möglich. Diese wurden in meiner Dissertation erstmals quantifiziert und ihr Einfluss auf die Klimasensitivität des Modellsystems wurde untersucht.

Im Rahmen dieser Arbeit habe ich verschiedene Klimagleichgewichtssimulationen mit dem Klima-Chemie-Modell EMAC durchgeführt, in welchem dynamischer Modellkern, physikalische Parametrisierungen (inklusive Strahlung), ozeanische Deckschicht und Chemiemodul interaktiv miteinander gekoppelt werden können. Damit war es erstmals möglich, die Bedeutung chemischer Rückkopplungsmechanismen zu berücksichtigen. Einige Simulationen wurden durch eine Erhöhung der CO_2 -Konzentration, andere durch eine Erhöhung der anthropogenen NO_x - und CO-Emissionen angetrieben. Eine reine CO_2 -Erhöhung bewirkt in einem interaktiven Klima-Chemie-Modell chemische Strahlungsrückkopplungen nur auf Grund der sich ändernden physikalischen Klimaparameter und deren Einfluss auf die Konzentrationen der chemisch aktiven Spurengase. Im Falle eines emissionsangetriebenen Erhöhungsexperimentes ist die interaktive Atmosphärenchemie sowohl für den Strahlungsantrieb als auch für die chemische Strahlungsrückkopplung verantwortlich.

Methodische Erweiterungen EMAC/MLO

Um diese Klimagleichgewichtsexperimente durchführen zu können, wurde im Rahmen meiner Arbeit für das Klima-Chemie-Modellsystem EMAC erstmals eine Konfiguration mit interaktiv gekoppelter Chemie und gekoppeltem Deckschichtozean erstellt. Diese Konfiguration bedingt die Verwendung einer vereinfachten Atmosphärenchemie, um die langen, rechenzeitintensiven Klimagleichgewichtssimulationen mit interaktiver Chemie durchführen zu können. Die quantitative Strahlungswirkung chemischer Rückkopplungskomponenten konnte mit Hilfe der von Stuber et al. (2001) entwickelte Methode der Rückkopplungsanalyse bestimmt werden, welche im Rahmen meiner Arbeit in EMAC implementiert und getestet wurde.

Zusammenfassung wissenschaftlicher Ergebnisse

CO₂-Erhöhungsexperimente: Die Auswertung des CO₂-Verdoppelungsexperimentes mit interaktiver Chemie ergab, dass die durch eine Erhöhung der CO₂-Konzentration induzierten geänderten Klimaparameter die Responsemuster strahlungsaktiver Gase signifikant beeinflussen. Die für die Konzentrationsänderungsmuster verantwortlichen Mechanismen konnten weitgehend identifiziert werden. Es stellte sich heraus, dass das simulierte Ozonänderungsmuster in einem wärmeren Klima, vor allem in der Stratosphäre, signifikante Änderungen aufweist. Die Abnahme von Ozon in der unteren tropischen Stratosphäre ließ sich auf verstärktes Tropical-upwelling zurückführen, was in Übereinstimmung mit aktuellen Modellstudien steht, in denen die Meeresoberflächentemperatur künstlich erhöht wurde (z.B. Garny, 2010). Die positive Ozonänderung in den stratosphärischen mittleren Breiten hingegen ist durch einen verlangsamten Ozonerstörungszyklus verursacht (z.B. Haigh und Pyle, 1982). Die Änderungen in den troposphärischen Ozonkonzentrationen wiederum konnten weitgehend durch geänderte Auswaschprozesse (hydrologischer Zyklus) und geänderte Blitz-NO_x-Emissionen erklärt werden. Stratosphärische Konzentrationsänderungen in Methan und Lachgas sind hauptsächlich durch geänderte chemische Reaktionen in einer kälteren Stratosphäre verursacht, wie sie sich infolge einer CO₂-Erhöhung einstellt. Die Annahme von festen Bodenkonzentrationen für Methan und Lachgas hat zur Folge, dass sich diese Gase in der Troposphäre kaum merklich ändern.

Um die Bedeutung der einzelnen Rückkopplungsparameter auf die Klimasensitivität zu bestimmen, wurden die Strahlungsrückkopplungen von Ozon, Methan und Lachgas aus den jeweiligen Änderungsmustern berechnet. Das Ergebnis ist eine negative Rückkopplung über Ozon ($-0.022 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$), wobei hier die Rückkopplung über stratosphärisches Ozon ($-0.031 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$) stark dominiert. Die Strahlungsrückkopplungen über Methan und Lachgas hingegen sind vernachlässigbar klein. Bedingt durch chemische Rückkopplungen ändern sich auch einige der physikalischen Rückkopplungskomponenten. So zeigte sich für das chemisch rückkoppelnde Experiment eine Änderung in der Wasserdampfrückkopplung um $-0.027 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$. Diese wird durch die negative Änderung der stratosphärischen Wasserdampfrückkopplung bestimmt und ist mit $-0.034 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ in etwa gleich groß wie die Rückkopplung über stratosphärisches Ozon.

Die Klimasensitivität ist durch den Einfluss von chemischen Rückkopplungen signifikant gegenüber dem Experiment ohne Chemie gedämpft (-0.1 K). Dieser relativ geringen Änderung in der globalen Bodentemperatur (4%) steht allerdings eine stark signifikante Änderung des Temperaturresponses in der Stratosphäre gegenüber. So ist eine Temperaturabnahme von -1 K in der unteren tropischen Stratosphäre und eine Temperaturzunahme von 2 K in der mittleren Stratosphäre zu verzeichnen. Auch der stratosphärische Wasserdampfresponse wird durch das Wirken von chemischen Rückkopplungen stark und signifikant beeinflusst. Es zeigt sich, dass dieser im Experiment mit Chemie kleiner ist. Als Ursache für die negative Wasserdampfresponseänderung wurde die im Experiment mit Chemie etwas schwächere Erwärmung der Coldpoint-Temperatur identifiziert. Troposphärischer Wasserdampf spielt hingegen für die Änderung der Klimasensitivität keine signifikante Rolle.

Aus weiteren CO₂-Erhöhungsexperimenten mit kleineren oder größeren Konzentrationsänderungen geht hervor, dass die Klimasensitivität mit zunehmendem CO₂-Antrieb stärker gedämpft wird. So ist im Falle eines CO₂-Verdoppelungsexperimentes die Klimasensitivität durch das Wirken von chemischen Rückkopplungen um 4% und im CO₂-Vervierfachungsexperiment um 8% gegenüber dem Experiment ohne interaktive Chemie gedämpft. Die Ursache für diesen Unterschied ist, dass eine zunehmende Antriebsstärke zu nichtlinear geänderten Rückkopplungen über Ozon und Wasserdampf führt. Ein weiteres Sensitivitätsexperiment wurde mit einer sechsfachen CO₂-Konzentration durchgeführt. Hier erreicht der Response der globalen Bodentemperatur in der Modellkonfiguration ohne interaktive Chemie kein Gleichgewicht mehr (Runaway-Greenhouse-Effekt). Dies ist unter anderem auf die festgeschriebene Ozonverteilung zurückzuführen, die im Falle einer Klimaerwärmung eine unrealistisch positive Strahlungsrückkopplung im Tropopausenbereich erzeugt (Heinemann, 2009). Im CO₂-Versechsfachungsexperiment mit interaktiv gekoppelter Chemie hingegen ist dieser Effekt durch das interaktiv agierende Ozonfeld unterbunden. Allerdings ist ein Runaway-Greenhouse-Effekt im Fall von noch höheren Antrieben nicht ausgeschlossen, da sich auch in den Experimenten mit interaktiver Chemie eine allmähliche Erhöhung der Klimasensitivität mit zunehmender Antriebsstärke feststellen lässt.

NO_x- und CO-Erhöhungsexperimente: Neben CO₂-angetriebenen Erhöhungsexperimenten wurden auch Experimente durchgeführt, in denen Ozonstörungen aus geänderten Emissionen von Vorläufersubstanzen als Klimaantrieb wirken. In diesen Simulationen wurden die anthropogenen NO_x- und CO-Emissionen um einen Faktor 9 skaliert, was einen Strahlungsantrieb über Ozon von etwa 1 Wm⁻² verursacht. In der so angetriebenen Simulation mit interaktiver Chemie lassen sich teilweise die gleichen chemischen Rückkopplungen nachweisen wie in den CO₂-angetriebenen Simulationen. Es treten aber zusätzlich auch neue Effekte auf, die auf der geänderten Wechselwirkung der verschiedenen Parameter und Prozesse beruhen. So ergibt sich z.B. für das Ozonänderungsmusters in beiden Simulationen eine Ozonabnahme in der unteren tropischen Stratosphäre, welche sich jedoch durch unterschiedliche Rückkopplungsmechanismen erklären lässt. In der emissionsangetriebenen Simulation ist die chemisch bedingte Ozonabnahme in der oberen Troposphäre für dieses Muster verantwortlich, während es in der CO₂-angetriebenen Simulation durch verstärktes Tropical-upwelling verursacht wird. Die signifikante Ozonzunahme in der mittleren Stratosphäre im CO₂-Erhöhungsexperiment ist im emissionsangetriebenen Experiment nicht vorhanden. Dies kann auf die unterschiedliche starke Abkühlung der Stratosphäre zurückgeführt werden, die in beiden Simulationstypen durch unterschiedliche Gase (CO₂ bzw. Ozon) verursacht wird. Auch die Ozonchemie der Troposphäre reagiert auf die geänderte Antriebsart unterschiedlich.

Die Klimasensitivität der durch NO_x- und CO-Emissionen angetriebenen Erhöhungssimulationen ist im Falle von interaktiv gekoppelter Chemie leicht, jedoch nicht signifikant, erhöht. Die Quantifizierung ausgewählter Rückkopplungsparameter zeigt eine negative Rückkopplung über Ozon (-0.166 Wm⁻²K⁻¹). Verglichen mit dem CO₂-angetriebenen Experiment ist die Ozonrückkopplung in diesem Fall betragsmäßig größer. Außerdem ist die Rückkopplung über troposphärisches Ozon größer als die über stratosphärisches Ozon. Nur eine vernachlässigbare Rückkopplung findet, ähnlich wie im CO₂-Erhöhungsexperiment, über Methan und Lachgas statt. Auch in dieser Simulation induzieren chemische Rückkopplungen eine Änderung der physikalischen Rückkopplungen. So wurde eine negative Änderung

des Wasserdampfrückkopplungsparameters infolge von interaktiv gekoppelter Chemie festgestellt, die mit $-0.040 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ vergleichbar mit der des CO_2 -Erhöhungsexperimentes ist. Sie wird auch hier durch die Änderung der stratosphärischen Wasserdampfrückkopplung dominiert.

Die nicht signifikante Änderung der Klimasensitivität ist nicht konsistent mit den oben beschriebenen negativen, dämpfenden Rückkopplungsparametern über Ozon und Wasserdampfänderung. Das heißt, dass andere, positive, Änderungen in physikalischen Rückkopplungen für die nicht signifikante Änderung der Klimasensitivität verantwortlich sein müssen. Darum ist für das Gesamtverständnis der Balance der Rückkopplungen eine komplette Rückkopplungsanalyse nötig. Leider konnten die wichtigen Rückkopplungen durch Wolken mit der in dieser Arbeit angewendeten Methode der Rückkopplungsanalyse nach Stuber et al. (2001) nicht berechnet werden (siehe Ausblick).

Schlussfolgerungen

Diese Arbeit bietet einen umfassenden Überblick über chemische Rückkopplungen in unterschiedlich angetriebenen Erhöhungsexperimenten, in denen sowohl Antriebsstärke als auch Antriebsart variiert wurden. Die Fragestellungen meiner Dissertation (siehe Kapitel 1) konnten beantwortet werden:

Wie verhält sich der Response strahlungsaktiver Gase und physikalischer Klimaparameter in Klimaänderungsexperimenten mit interaktiver Chemie?

- Die Konzentrationsänderungsmuster, die zu den chemisch bedingten Rückkopplungen führen, konnten sowohl im CO_2 - als auch im emissionsangetriebenen Erhöhungsexperiment weitgehend identifiziert werden. Damit bieten interaktive Simulationen eine erweiterte Möglichkeit für ein verbessertes Prozessverständnis.
- Die im interaktiv gekoppelten System wirkenden chemischen Rückkopplungen führen zu konsistenten und markanten Änderungen in den physikalischen Rückkopplungen, was z.B. für die Änderung im stratosphärischen Wasserdampf deutlich wird. Dessen Bedeutung als positiver Rückkopplungsmechanismus ist im Modellsystem mit Chemie signifikant reduziert.

Wie groß ist die Rückkopplungsstärke von strahlungsaktiven Gasen im Vergleich zu physikalischen Rückkopplungen?

- Verglichen mit den physikalischen Rückkopplungskomponenten erweisen sich die Rückkopplungen über die strahlungsaktiven Gase als sehr klein. Der Vergleich mit dem gegenwärtigen, anthropogenen Strahlungsantrieb des stratosphärischen Ozons auf Grund anthropogener FCKW-Emissionen zeigt aber, dass die Rückkopplungen über stratosphärisches Ozon sowie die Rückkopplungsänderung über stratosphärischen Wasserdampf von der gleichen Größenordnung sind. Somit ist es wichtig, sie bei einer Beurteilung des gesamten Ozoneffekts zu berücksichtigen.

Wie variieren chemische Rückkopplungen bei geänderter Antriebsstärke und Antriebsart?

- Die Variation von Antriebsart und Antriebsstärke ruft unterschiedliche dominierende Rückkopplungsprozesse hervor. Am Beispiel der Ozonrückkopplung wird deutlich, dass im CO₂-angetriebenen Klimaerwärmungsexperiment die stratosphärische Ozonänderung wichtig ist, während in der emissionsangetriebenen Simulation die Strahlungsrückkopplung der troposphärischen Ozonänderung stärker ist.

Welchen Einfluss haben Rückkopplungen über strahlungsaktive Gase auf die Klimasensitivität des Modellsystems?

- Der Einfluss chemischer Rückkopplungen auf die Klimasensitivität ist im Falle von moderaten Antrieben für das im Rahmen dieser Arbeit erstellte Modellsystem gering. Sie wird relativ größer, wenn der auslösende Strahlungsantrieb zunimmt. Es zeigte sich aber, dass Gleichgewichtssimulationen mit interaktiv gekoppelter Chemie die lineare Approximation $\Delta T_{surf} = \lambda * RF$ mit konstantem Klimasensitivitätsparameter λ , gemäß der gängigen Theorie von Strahlungsantrieb und Klimaresponse, besser erfüllen.
- Klimasimulationen, die durch Ozonstörungen aus Emissionen angetrieben werden, müssen somit nicht mit einem Klima-Chemie-Modell gerechnet werden. Der herkömmliche Weg über Chemie-Transportmodelle liefert hinreichend gute Werte für den Klimasensitivitätsparameter. Ausnahmen sind möglich, wenn die Störungen, durch Idealisierung oder starke Skalierung, zu starke lokale Effekte auslösen.

Solange das Wissen über Rückkopplungen im Klimasystem gering ist und die Gründe für einen nicht konstanten Klimasensitivitätsparameter ungeklärt sind, ist es neben der genauen Beschreibung von physikalischen Rückkopplungsprozesse wichtig, auch Rückkopplungen über nicht-physikalische Prozesse möglichst vollständig im Modellsystem zu erfassen. Die Idee, chemische Rückkopplungen im Modell zu berücksichtigen, wurde in dieser Arbeit zum ersten Mal verwirklicht und verdient weitere Erprobung. Dies gilt vor allem für Simulationen mit großem Strahlungsantrieb, in denen die Vernachlässigung der Ozonrückkopplung zu künstlichen Effekten, eventuell sogar zu einen Runaway-Greenhouse-Effekt führen kann.

Ausblick

Eine offene Frage, die im Rahmen dieser Arbeit nicht beantwortet werden konnte, ist die vollständige und exakte Bestimmung aller Rückkopplungskomponenten mittels der in Kapitel 2.2 vorgestellten 'Partial Radiative Perturbation'-Rückkopplungsanalyse (Wetherald und Manabe, 1988). Wie bereits erwähnt, ist für das quantitative Gesamtverständnis die Bestimmung aller im System wirkenden Rückkopplungen nötig. Sowohl für die CO₂-Erhöhungssimulation als auch für die emissionsangetriebene Simulation wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Rückkopplungen der strahlungsaktiven Gase und von Wasserdampf mit Hilfe der Stuber-Methode bestimmt. Die Wolkenrückkopplung, Albedorückkopplung und

Lapse-rate-Rückkopplung wurden mit dieser Methode nicht bestimmt. Die Wolkenrückkopplung ist mit dieser Methode sogar prinzipiell nicht berechenbar. Wie sich in dieser Arbeit aber zeigte, ist die Kenntnis der Änderungen aller physikalischen Rückkopplungen für das Gesamtverständnis mancher Simulationen nötig. Das nächste Ziel muss nun sein, die Rückkopplungskomponenten vollständig mittels der 'Partial Radiative Perturbation'-Methode zu bestimmen. Die Möglichkeit dieser Rückkopplungsanalyse steht durch das offline ECHAM-Strahlungstool zur Verfügung (Klocke et al., 2011). Nach einigen Anpassungen, wie z.B. dem stratosphären-adjustierten Strahlungsantrieb, könnten die fehlenden Rückkopplungskomponenten berechnet werden.

Um chemische Rückkopplungen, wie sie in dieser Arbeit vorgestellt wurden, zu untersuchen, wurde ein Klima-Chemie-Modellsystem erstellt, das mit vereinfachter Atmosphärenchemie rechnet. Eine höhere Komplexität des Chemiemechanismus, wie z.B. die Berücksichtigung der NMHCs oder von Aerosolen, beschreibt das Klimasystem noch genauer und vollständiger, und es sind weitere bzw. andere wirkende Rückkopplungsmechanismen zu erwarten. Mit steigender Rechenleistung werden auch solche Simulationen möglich sein.

Die Entwicklung der Klimamodellierung hin zu komplexeren Modellsystemen wird dominiert von der Zielsetzung des Verständnisses des gesamten Erdsystems. Die sogenannte Erdsystemmodellierung integriert neben den Komponenten der Atmosphäre weitere Komponenten wie z.B. den tiefen Ozean, die Vegetation, den Kohlenstoffzyklus und Emissionen. Ziel ist es ein möglichst großes Spektrum aller klimarelevanten Wechselwirkungen der Natur wiederzugeben. Ein Beispiel für weitere Rückkopplungen in komplexeren Modellsystemen sind Rückkopplungen über Emissionen. Während in der vorliegenden Arbeit die Methankonzentrationen am Boden vorgeschrieben sind, ist es in einem Modellsystem mit interaktiven Bodenemissionen möglich, dass das Auftauen von Permafrostböden bei einer Erwärmung der arktischen Temperaturen zu einer zusätzlichen Freisetzung von Methan führt. Dies wäre ein Beispiel einer weiteren, positiven Rückkopplung im Klimasystem. In diesem Sinne liefert die vorliegende Arbeit nun einen Einstieg in die Modellwelt von Erdsystemmodellen mit interaktiver Chemie. Die im vorigen Abschnitt zusammengefassten Ergebnisse bezüglich der Wechselwirkung von Ozon und Klima sollten jedoch auch in komplexeren Modellkonfigurationen Bestand haben.

Anhang A

Statistische Signifikanz in Klimaänderungsmustern

Dieser Anhang stellt die Response- und Responseänderungsmuster aus den Kapiteln 6 und 7 mit einem hinterlegten Signifikanztest dar, worauf im Haupttext aus Gründen der Übersichtlichkeit verzichtet worden ist. Der verwendete Signifikanztest basiert auf einem univariaten Student-t-Test. Auf eine Reduzierung der Freiheitsgrade gemäß der Autokorrelation der Zeitreihen wurde hierbei verzichtet. Folgende Abbildungen zeigen jeweils die zonalen Response- bzw. Responseänderungsmuster, wobei weiß hinterlegte Bereiche nicht signifikant auf dem 95%-Niveau sind. Abbildung A1 stellt den Signifikanztest für den Response in den strahlungsaktiven Gasen im CO₂-Verdoppelungsexperiment dar. Der Signifikanztest für die Temperatur- und Wasserdampfresponseänderung infolge chemischer Rückkopplungen wurde bereits in Kapitel 6 vorgestellt (Abbildung 6.5 d und 6.7 d). Des Weiteren erfolgt die Darstellung des Signifikanztestes für das 442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperiment. Gezeigt wird der Response der strahlungsaktiven Gase sowie die absolute Responseänderung von Temperatur und die relative Responseänderung des Wasserdampfmischungsverhältnisses (siehe Abbildungen A2 und A3). Die Abbildungen A4 - A7 zeigen den Signifikanztest für die Responsemuster der strahlungsaktiven Gase in den Klimagleichgewichtssimulationen mit erhöhten anthropogenen NO_x- und CO-Emissionen. In Abbildung A4 wird der Response der strahlungsaktiven Gase für das Erhöhungsexperiment mit fester SST und in Abbildung A5 für das Erhöhungsexperiment mit gekoppeltem Ozean gezeigt. Abbildung A6 stellt dann die Differenz zwischen dem Experiment mit fester SST und gekoppeltem Ozean dar. Signifikante Bereiche von Temperatur- und Wasserdampfresponseänderung infolge interaktiver Chemie im NO_x- und CO-angetriebenen Experiment sind in Abbildung A7 zu sehen.

CO₂-Verdoppelungsexperiment (Abbildung A1):

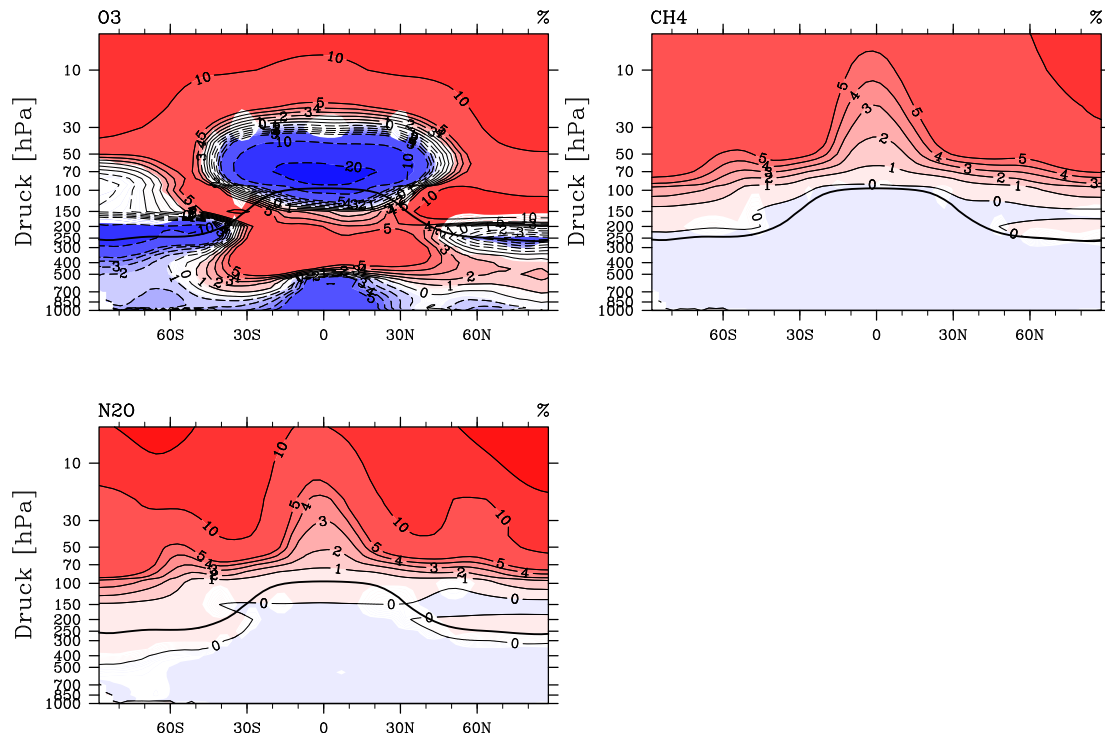


Abbildung A1: Zonalmittel der relativen Änderung im Ozon-, Methan- und Lachgasmischungsverhältnis infolge einer CO₂-Verdoppelung im Experiment mit interaktiver Chemie. Weiß hinterlegte Bereiche sind nicht signifikant auf dem 95%-Niveau. Die an einigen Stellen als statistisch signifikant ausgewiesene Bereiche ergeben sich aus einer technischen Inkonsistenz bei der graphischen Darstellung, siehe Fußnote 7.

442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperiment (Abbildungen A2-A3):

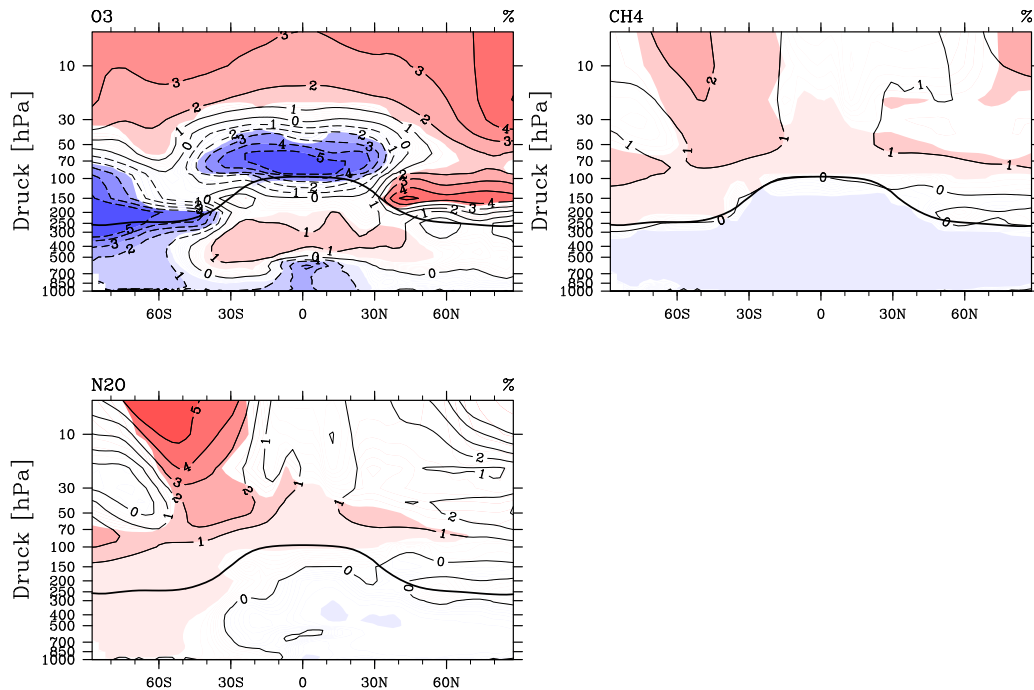


Abbildung A2: Zonalmittel der relativen Änderung im Ozon-, Methan- und Lachgasmischungsverhältnis infolge einer 442-ppmv-CO₂-Erhöhung im Experiment mit interaktiver Chemie. Weiß hinterlegte Bereiche sind nicht signifikant auf dem 95%-Niveau.

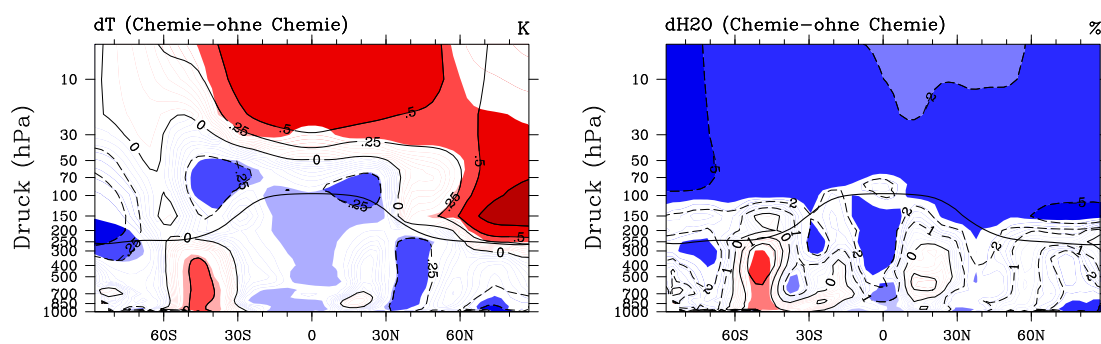


Abbildung A3: Zonalmittel der Temperatur- und Wasserdampfresponseänderung infolge interaktiv gekoppelter Chemie im 442-ppmv-CO₂-Erhöhungsexperiment. Weiß hinterlegte Bereiche sind nicht signifikant auf dem 95%-Niveau.

NO_x- und CO-Erhöhungsexperiment (Abbildungen A4-A7):

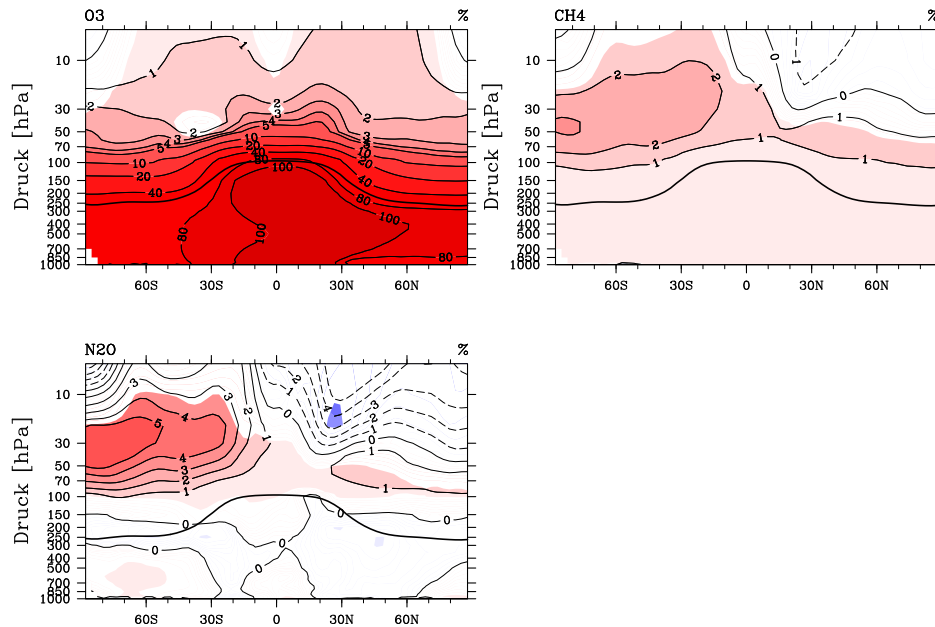


Abbildung A4: Zonalmittel der relativen Änderung im Ozon-, Methan- und Lachgasmischungsverhältnis infolge einer Erhöhung der anthropogenen NO_x- und CO-Emissionen im Experiment fester SST (direkter Emissionseffekt). Weiß hinterlegte Bereiche sind nicht signifikant auf dem 95%-Niveau.

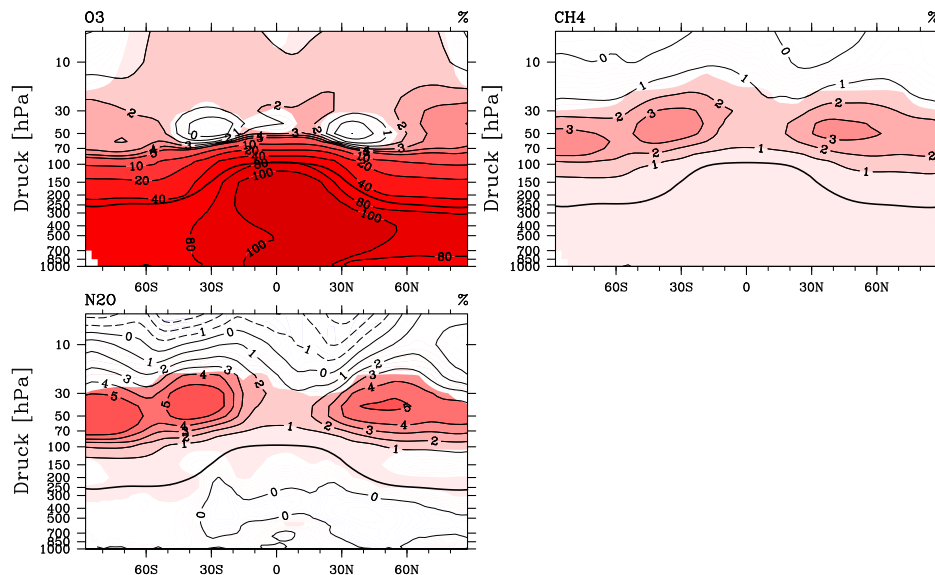


Abbildung A5: Zonalmittel der relativen Änderung im Ozon-, Methan- und Lachgasmischungsverhältnis infolge einer Erhöhung der anthropogenen NO_x- und CO-Emissionen im Experiment mit gekoppeltem Ozean (direkter Emissionseffekt und Rückkopplungen). Weiß hinterlegte Bereiche sind nicht signifikant auf dem 95%-Niveau.

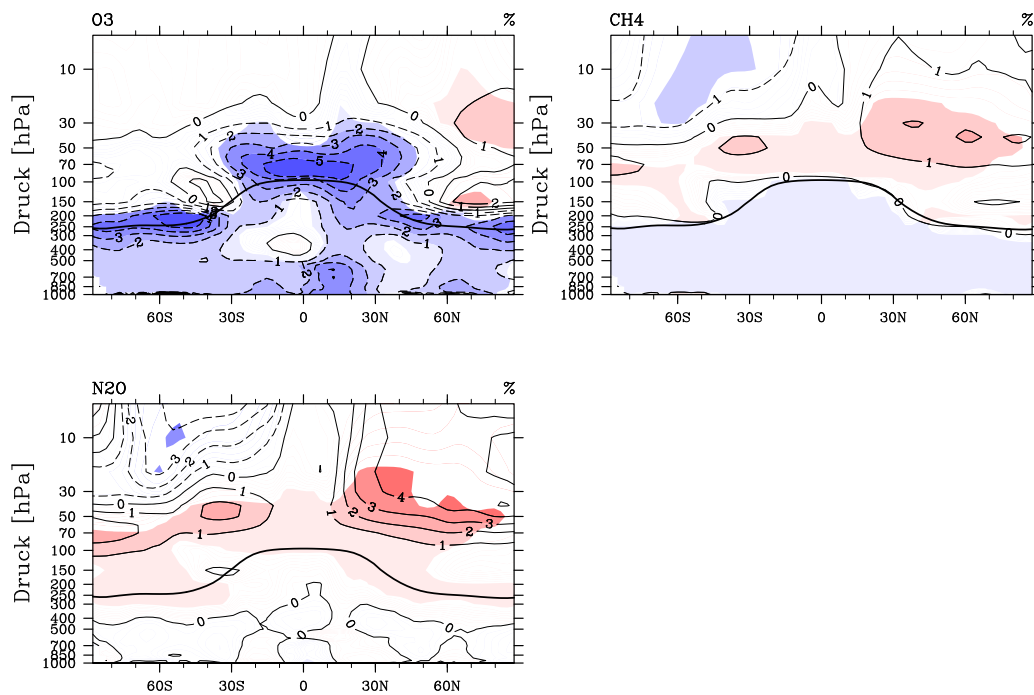


Abbildung A6: Zonalmittel der relativen Responseänderung im Ozon-, Methan- und Lachgas-mischungsverhältnis infolge interaktiv gekoppelter Chemie im emissionsangetriebenen NO_x - und CO-Erhöhungsexperiment (Differenz der beiden oberen Bilder). Weiß hinterlegte Bereiche sind nicht signifikant auf dem 95%-Niveau. Die an einigen Stellen als statistisch signifikant ausgewiesene Bereiche ergeben sich aus einer technischen Inkonsistenz bei der graphischen Darstellung, siehe Fußnote 7.

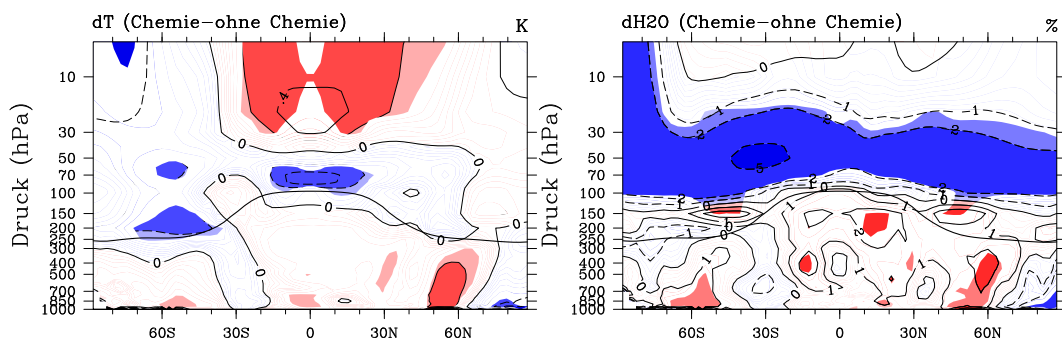


Abbildung A7: Zonalmittel der absoluten Responseänderung von Temperatur sowie der relativen Responseänderung von Wasserdampf infolge interaktiv gekoppelter Chemie im emissionsangetriebenen NO_x - und CO-Erhöhungsexperiment. Weiß hinterlegte Bereiche sind nicht signifikant auf dem 95%-Niveau. Die an einigen Stellen als statistisch signifikant ausgewiesene Bereiche ergeben sich aus einer technischen Inkonsistenz bei der graphischen Darstellung, siehe Fußnote 7.

Absolute Änderung des Wasserdampfresponses

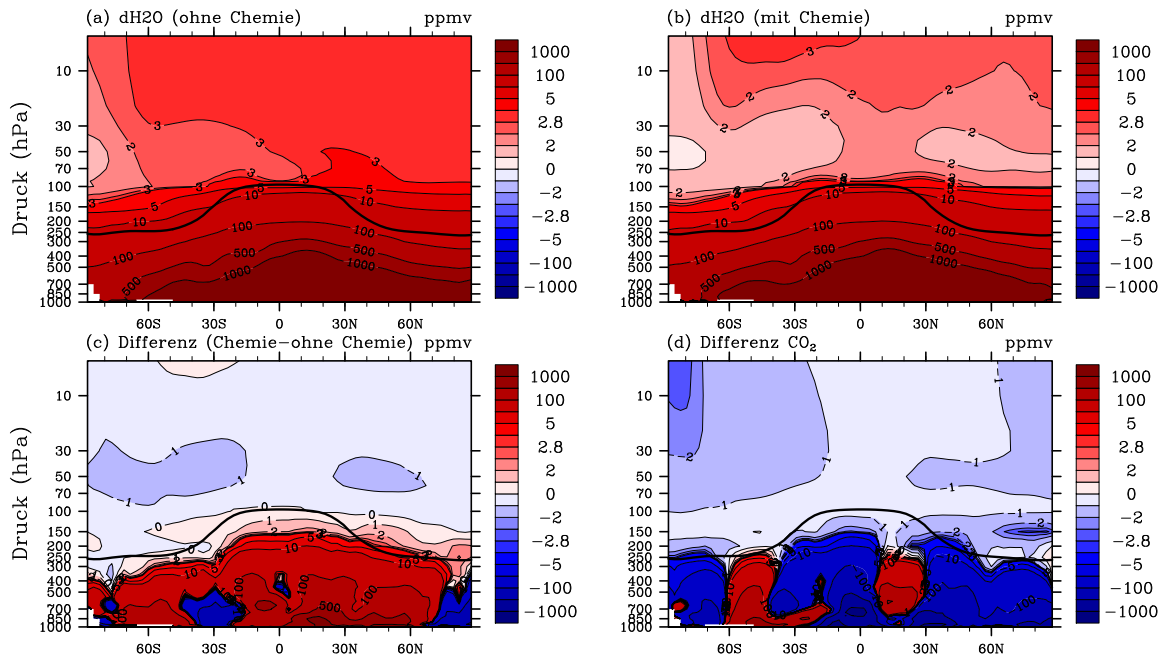


Abbildung A8: Zonalmittel (Jahresmittel) der absoluten Wasserdampfänderung (in ppmv) für eine Erhöhung der anthropogenen NO_x- und CO-Emissionen (a) im Experiment ohne und (b) im Experiment mit interaktiver Chemie. (c) zeigt die Differenz zwischen den zwei emissionsangetriebenen Änderungsmustern. (d) stellt die Differenz des CO₂-angetriebenen Erhöhungsexperiment von gleicher Antriebsstärke dar.

Anhang B

Abkürzungsverzeichnis

AMIP	Atmospheric Model Intercomparison Project
AR4	Vierter Assessment Report des IPCC
AR5	Fünfter Assessment Report des IPCC
CFL	Courant-Friedrich-Levy-Kriterium
CHEM	Chemiemodul, das mit ECHAM gekoppelt werden kann
CPT	Coldpoint-Temperatur
CRF	Cloud Radiative Forcing
Δ CRF	Cloud Radiative Feedback
CTM	Chemie-Transportmodell
DKRZ	Deutsches Klimarechenzentrum
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
ECHAM	Modell des ECMWF, HAMburger Version
ECHAM4L39(DLR)	DLR Version von ECHAM4 mit 39 vertikalen Schichten
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
EMAC	ECHAM5/MESSy Atmospheric Chemistry
EMAC/MLO	EMAC, gekoppelt an den Deckschichtozean MLO
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
KPP	Kinetic pre-processor
MECCA	Chemiemodul, das mit EMAC gekoppelt werden kann
MESSy	Modular Earth Submodel System
MLO	Mixed Layer Ocean
PSC	Polar Stratospheric Cloud, polare Stratosphärenwolke
PRP	Partial Radiative Perturbation
QBO	Quasi-Biennial Oscillation, quasi-zweijährige Schwingung
RF	Radiative Forcing (Strahlungsantrieb)
SST	Sea Surface Temperature (Meeresoberflächentemperatur)
TOA	Top of Atmosphere
UNFCCC	United Nations Framework Convention on Climate Change

Chemische Spezies

CH ₄	Methan
ClO _x	aktive Chlorverbindungen
Cl _y	aktive (verfügbare) Chlorverbindungen
CO	Kohlenmonoxid
CO ₂	Kohlendioxid
FCKW	Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoff
HCl	Chlorwasserstoff
HNO ₃	Salpetersäure
HO ₂	Hydroperoxy-Radikal
H ₂ O	Wasser, Wasserdampf
HO _x	Hydrogen-Oxide (OH+HO ₂)
M	Stoßpartner
NMHC	Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe
NO	Stickstoffmonoxid
NO ₂	Stickstoffdioxid
N ₂ O	Lachgas
NO _x	Stickoxide (NO + NO ₂)
NO _y	aktiv (verfügbare) Stickoxide
O ₂	Sauerstoff
O ₃	Ozon
OH	Hydroxyl-Radikal

Masseinheiten

DU	Dobson Unit
ppmv	parts per million (Volumenmischungsverhältnis 10 ⁻⁶ mol/mol)
pptv	parts per trillion (Volumenmischungsverhältnis 10 ⁻¹² mol/mol)
nm	nanometer
CPU	Central Processing Unit
hPa	Hektopascal (1 hPa = 100 Pa)

Symbole

λ	Klimasensitivitätsparameter
α	Rückkopplungsparameter
ΔT_{surf}	Änderung der globalen bodennahen Temperatur
f	Rückkopplungsfaktor
$h\nu$	Licht
p	Druck

Literaturverzeichnis

- Asselin R., 1972: Frequency filter for time integrations. *Mon. Wea. Rev* **100**: 487–490.
- Bony S., Colman R., Kattsov V.M., Allan R., Bretherton C., Dufresne J., Hall A., Hallegatte S., Holland M., Ingram W., Randall D., Soden B., Tselioudis G. und Webb M., 2006: How Well Do We Understand and Evaluate Climate Change Feedback Processes? *J. Climate* **19**: 3445–3482.
- Brewer A.W., 1949: Evidence for a world circulation provided by measurements of helium and water vapor distribution in the stratosphere. *Q.J.R. Meteorol. Soc* **75**: 351–363.
- Buchholz J., 2005: Simulations of physics and chemistry of polar stratospheric clouds with a general circulation model. Dissertation, Johannes-Gutenberg Universität, Mainz.
- Cess R., Potter G., Blanchet J., Boer G., Del Genio A., Deque M., Dymnikov V., Galin V., Gates W., Ghan S., Kiehl J., Lacis A., Le Treut H., Li Z.X., Liang X.Z., McAvaney B., Meleshko V., Mitchell J., Morcrette J.J., Randall D., Rikus L., Roeckner E., Royer J., Schlese U., Sheinin D., Slingo A., Sokolov A., Taylor K., Washington W., Wetherald R., Yagai I. und Zhang M.H., 1990: Intercomparison and interpretation of climate feedback processes in 19 atmospheric general circulation models. *J. Geophys. Res.* **95**: 16601–16615.
- Cess R., Potter G., Blanchet J., Boer G., Ghan S., Kiehl J., Le Treut H., Li Z.X., Liang X.Z., Mitchell J., Morcrette J.J., Randall D., Riches M., Roeckner E., Schlese U., Slingo A., Taylor K., Washington W., Wetherald R. und Yagai I., 1989: Interpretation of cloud-climate feedback as produced by 14 atmospheric general-circulation models. *Science* **245**: 513–516.
- Cess R., Potter G., Ghan S. und Gates W., 1985: The climate effects of large injections of atmospheric smoke and dust: A study of climate feedback mechanism with one- and tree-dimensional climate models. *J. Geophys. Res.* **90**: 12937–12950.
- Cess R., Zhang M., Ingram W., Potter G., Alekseev V., Barker H., Cohen-Solal E., Colman R., Dazlich D., Del Genio A., Dix M., Dymnikov V., Esch M., Fowler L., Fraser J., Galin V., Gates W., Hack J., Kiehl J., Le Treut H., Lo K.K.W., McAvaney B., Meleshko V., Morcrette J.J., Randall D., Roeckner E., Royer J.F., Schlesinger M., Sporyshev P.V., Timbal B., Volodin E., Taylor K.E., Wang W. und Wetherald R., 1996: Cloud feedback in atmospheric general circulation models: An update. *J. Geophys. Res.* **101**: 12791–12794.

- Cionni I., Eyring V., Lamarque J., Randel W., Stevenson D., Wu F., Bodeker G., Shepherd T., Shindell D. und Waugh D., 2011: Ozone database in support of CMIP5 simulations: results and corresponding radiative forcing. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **11**: 10875–10933.
- Clough S., Iacono M. und Moncet J.L., 1992: Line-by-line calculation of atmospheric fluxes and cooling rates: Application to water vapor. *J. Geophys. Res.* **97**: 15761–15785.
- Colman R., 2003: A comparison of climate feedbacks in general circulation models. *Climate Dyn.* **20**: 865–873.
- Cook J. und Highwood E., 2003: Climate response to tropospheric absorbing aerosols in an intermediate general-circulation model. *Q.J.R. Meteorol. Soc.* **130**: 175–191.
- Dameris M., 2010: Klimawandel und die Chemie der Atmosphäre - wie wird sich die stratosphärische Ozonschicht entwickeln? *Angew. Chem.* **122**: 8268–8279.
- Dameris M., Grewe V., Ponater M., Deckert R., Eyring V., Mager F., Matthes S., Schnadt C., Stenke A., Steil B., Brühl C. und Giorgetta M.A., 2005: Long-term changes and variability in a transient simulation with a chemistry-climate model employing realistic forcing. *Atmos. Chem. Phys.* **5**: 2121–2145.
- Deckert R. und Dameris M., 2008: Higher tropical SSTs strengthen the tropical upwelling via deep convection. *Geophys. Res. Lett.* **35**: L10813.
- Dobson G., 1956: Origin and Distribution of the Polyatomic Molecules in the Atmosphere. *Royal Society of London Proceedings Series A* **236**: 187–193.
- Eyers C., Norman P., Middel J., Plohr M., Michot S., Atkinson K. und Christou R., 2004: AERO2K Global Aviation Inventories for 2001 and 2025. *Report number QinetiQ/04/01113, QinetiQ, Farnborough* .
- Eyring V., Cionni I., Bodeker G.E., Charlton-Perez A.J., Kinnison D.E., Scinocca J.F., Waugh D.W., Akiyoshi H., Bekki S., Chipperfield M.P., Dameris M., Dhomse S., Frith S.M., Garny H., Gettelman A., Kubin A., Langematz U., Mancini E., Marchand M., Nakamura T., Oman L.D., Pawson S., Pitari G., Plummer D.A., Rozanov E., Shepherd T.G., Shibata K., Tian W., Braesicke P., Hardiman S.C., Lamarque J.F., Morgenstern O., Pyle J.A., Smale D. und Yamashita Y., 2010: Multi-model assessment of stratospheric ozone return dates and ozone recovery in CCMVal-2 models. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **10**: 11659–11710.
- Fels S., Mahlman J., Schwarzkopf M. und Sinclair R., 1980: Stratospheric sensitivity to perturbations in ozone and carbon dioxide: radiative dynamical response. *J. Atmos. Sci.* **37**: 2265–2297.
- Forster P., Ramaswamy V., Artaxo P., Berntsen T., Betts R., Fahey D., Haywood J., Lean J., Lowe D., Myhre G., Nganga J., Prinn R., Raga G., Schulz M. und Van Dorland R., 2007: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, chap.

- Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. Cambridge University Press, Cambridge, UK, pp. 129–234.
- Fortuin J. und Kelder H., 1998: An ozone climatology based on ozonesonde and satellite measurements. *J. Geophys. Res.* **103**: 709–731.
- Fouquart Y. und Bonnel B., 1980: Computations of solar heating of earth's atmosphere: A new parameterisation. *Beitr. Phys. Atmos.* **53**: 35–62.
- Ganzeveld L.N., van Aardenne J.A., Butler T.M., Lawrence M.G., Metzger S.M., Stier P., Zimmermann P. und Lelieveld J., 2006: Technical Note: Anthropogenic and natural offline emissions and the online Emissions and dry DEPosition submodel EMDEP of the Modular Earth Submodel system (MESSy). *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **6**: 5457–5483.
- Garcia R. und Randel W., 2008: Acceleration of the Brewer-Dobson Circulation due to Increase in Greenhouse Gases. *J. Atmos. Sci.* **65**: 2731–2739.
- Garny H., 2010: Causes and impacts of changes in the stratospheric meridional circulation in a chemistry-climate model. Dissertation, Fakultät für Physik, Ludwig-Maximilians-Universität München, DLR Forschungsbericht 2011-03, ISSN 1434-8454, Köln.
- Gauss M., Myhre G., Isaksen I., Grewe V., Pitari G., Wild O., Collins W., Dentener F., Ellingsen K., Goha L., Hauglustaine D., Iachetti D., Lamarque F., Mancini E., Mickley L., Prather M., Pyle J., Sanderson M., Shine K., Stevenson D., Sudo K., Szopa S. und Zeng G., 2006: Radiative forcing since preindustrial times due to ozone change in the troposphere and the lower stratosphere. *Atmos. Chem. Phys.* **6**: 575–599.
- Giorgetta M. und Bengtsson L., 1999: The potential role of the quasi-biennial oscillation in stratosphere-troposphere exchange as found in water vapour in general circulation model experiments. *J. Geophys. Res.* **104**: 6003–6019.
- Gregory J., Ingram W., Palmer M., Jones G., Stott P., Thorpe R., Lowe J., Johns T. und Williams K., 2004: A new method for diagnosing radiative forcing and climate sensitivity. *Geophys. Res. Lett.* **31**: L03205.
- Gregory J. und Webb M., 2007: Tropospheric adjustment induces a cloud component in CO₂ forcing. *J. Climate* **21**: 58–71.
- Grewe V., Brunner D., Dameris M., Grenfell J. L., Hein R., Shindell D. und Staehelin J., 2001a: Origin and variability of upper tropospheric nitrogen oxides and ozone at northern mid-latitudes. *Atmos. Environ.* **35**: 3421–3443.
- Grewe V., Dameris M., Hein R., Sausen R. und Steil B., 2001b: Future changes of the atmospheric composition and the impact of climate change. *Tellus* **53B**: 103–121.
- Haigh J. und Pyle J., 1982: Ozone perturbation experiments in a two-dimensional circulation model. *Q. J. Roy Meteorol. Soc.* **108**: 551–574.
- Hansen J., Lacis A., Rind D., Russell G., Stone P., Fung I., Ruedy R. und Lerner J., 1984: Climate sensitivity: Analysis of feedback mechanism. *Geophys. Monogr. Ser.* **29**: 130–163.

- Hansen J., Sato M. und Ruedy R., 1997: Radiative forcing and climate response. *J. Geophys. Res.* **102**: 6831–6864.
- Hansen J., Sato M., Ruedy R., Nazarenko L., Lacis A., Schmidt G., Russell G., Aleinov I., Bauer M., Bauer S., Bell N., Cairns B., Canuto V., Chandler M., Cheng Y., Del Genio A., Faluvegi G., Fleming E., Friend A., Hall T., Jackman C., Kelley M., Kiang N., Koch D., Lean J., Lerner J., Lo K., Menon S., Miller R., Minnis P., Novakov T., Oinas W., Perlwitz J., Perlwitz J., Rind D., Romanou A., Shindell D., Stone P., Sun S., Tausnev N., Thresher D., Wielicki B., Wong T., Yao M. und Zhang S., 2005: Efficacy of Climate Forcings. *J. Geophys. Res.* **110**: D18104.
- Hein R., Dameris M., Schnadt C., Land C., Grewe V., Köhler I., Ponater M., Sausen R., Steil B., Landgraf J. und Brühl C., 2001: Results of an interactively coupled atmospheric chemistry-general circulation model: comparison with observations. *Ann. Geophys* **19**: 435–457.
- Heinemann M., 2009: Warm and sensitive Paleocene-Eocene climate. Dissertation, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- Houghton J., Ding Y., Griggs D., Noguer M., van der Linden P., Dai X. und Maskell K., 2001: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Houghton J., Jenkins G. und Ephraums J., 1990: *Climate Change: The IPCC Scientific Assessment*. Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Isaksen I.S.A., Granier C., Myhre G., Berntsen T.K., Dalsoren S.B., Gauss M., Klimont Z., Benestad R., Bousquet P., Collins W., Cox T., Eyring V., Fowler D., Fuzzi S., Jöckel P., Laj P., Lohmann U., Maione M., Monks P., Prevo A.S.H., Raes F., Richter A., Rognerud B., Schulz M., Shindell D., Stevenson D.S., Storelvmo T., Wang W.C., van Weele M., Wild M. und Wuebbles D., 2009: Atmospheric composition change: Climate-Chemistry interactions. *Atmos. Environ.* **43**: 5138–5192.
- Jöckel P., Sander R., Kerkweg A., Tost H. und Lelieveld J., 2005: Technical Note: The Modular Earth Submodel System (MESSy) - a new approach towards Earth System Modelling. *Atmos. Chem. Phys.* **5**: 433–444.
- Johnson C., Collins W., Stevenson D. und Derwent R., 1999: Relative roles of climate and emissions changes on future tropospheric oxidants concentrations. *J. Geophys. Res.* **104**: 18631–18645.
- Joshi M., Shine K., Ponater M., Stuber N., Sausen R. und Li L., 2003: A comparison of climate response to different radiative forcings in three general circulation models: towards an improved metric of climate change. *Climate Dyn.* **20**: 843–854.
- Jöckel P., Tost H., Pozzer A., Brühl C., Buchholz J., Ganzeveld L., Hoor P., Kerkweg A., Lawrence M., Sander R., Steil B., Stiller G., Tanarhte M., Taraborrelli D., van Aardenne J. und Lelieveld J., 2006: The atmospheric chemistry general circulation model

- ECHAM5/Messy 1: consistent simulation of ozone from the surface to the mesosphere. *Atmos. Chem. Phys.* **6**: 5067–5104.
- Kerkweg A., Buchholz J., Ganzeveld L., Pozzer A., Tost H. und Jöckel P., 2006a: Technical Note: An implementation of the dry removal processes DRY DEPosition and SEDImentation in the Modular Earth Submodel System (MESSy). *Atmos. Chem. Phys.* **6**: 4617–4632.
- Kerkweg A., Sander R., Tost H. und Jöckel P., 2006b: Technical Note: Implementation of prescribed (OFFLEM), calculated (ONLEM) and pseudo-emissions (TNUDGE) of chemical species in the Modular Earth Submodel System (MESSy). *Atmos. Chem. Phys.* **6**: 3603–3609.
- Klocke D., Pincus R. und Quaas J., 2011: On constraining estimates of climate sensitivity with present-day observations through model weighting. *Accepted for publication in the J. Clim.*
- Knutti R. und Hegerl G., 2008: The equilibrium sensitivity of the earth's temperature to radiation changes. *Nature Geoscience* **1**: 735–743.
- Knutti R., Stocker T., Joss F. und Plattner G.K., 2002: Constraints on radiative forcing and future climate change from observations and climate model ensembles. *Nature* **416**: 719–723.
- Lacis A., Wuebbles D. und Logan J., 1990: Radiative forcing of climate by changes in the vertical distribution of ozone. *J. Geophys. Res.* **95**: 9971–9981.
- Lamarque J.F., Bond T.C., Eyring V., Granier C., Heil A., Klimont Z., Lee D., Liousse C., Mieville A., Owen B., Schultz M.G., Shindell D., Smith S.J., Stehfest E., Van Aardenne J., Cooper O.R., Kainuma M., Mahowald N., McConnell J.R., Naik V., Riahi K., und van Vuuren D.P., 2010: Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application. *Atmos. Chem. Phys. Discuss* **10**: 4963–5019.
- Landgraf J. und Crutzen P., 1998: An efficient method for online calculations of photolysis and heating rates. *J. Atmos. Sci.* **55**: 863–878.
- Lelieveld J., Brühl C., Jöckel P., Steil B., Crutzen P., Fischer H., Giorgetta M., Hoor P., Lawrence M., Sausen R. und Tost H., 2007: Stratospheric dryness: Model simulations and satellite observations. *Atmos. Chem. Phys.* **7**: 1313–1332.
- Liao H., Chen W.T. und Seinfeld J., 2006: Role of climate change in global prediction of future tropospheric ozone and aerosols. *J. Geophys. Res.* **111**: D12304.
- Lin S. und Rood R., 1996: Multidimensional flux from semi-Lagrangian transport. *Mon. Wea. Rev.* **124**: 2046–2068.
- Logan J.A., 1985: Tropospheric ozone: Seasonal behaviour, trends, and anthropogenic influences. *J. Geophys. Res.* **90**: 10463–10482.

- Meehl G., Stocker T., Collins W., Friedlingstein P., Gaye A., Gregory J., Kitoh A., Knutti R., Murphy J., Noda A., Raper S., Watterson I., Weaver A. und Zhao Z.C., 2007: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, chap. Global Climate Projections. Cambridge University Press, Cambridge, UK, pp. 129–234.
- Meilinger S., 2000: Heterogeneous Chemistry in the Tropopause Region: Impact of Aircraft Emission. Dissertation, ETH Zürich, Schweiz.
- Mitchell J., Karoly D., Allen M., Hegerl G., Zwiers F. und Marengo J., 2001: Detection of climate change and attribution of causes. In: *International Panel on Climate Change (IPCC): Climate Change 2001: The Scientific Basis*. Cambridge Univ. Press, Cambridge, UK, pp. 695–738.
- Mlawer E., Taubman S., Brown P., Iacono M. und Clough S., 1997: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. *J. Geophys. Res.* **102**: 16663–16682.
- Nakicenovic N. und Swart R.H., 2000: Special Report on Emissions Scenarios: A Special Report of Working Group III of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge Univ. Press., Cambridge, UK, p. 599 pp.
- Nordeng T., 1994: *Extended Versions of the Convective Parametrization Scheme at ECMWF and Their Impact on the Mean and Transient Activity of the Model in the Tropics*. Tech. rep., ECWMF.
- Ponater M., 2009: Cloud Radiative Feedback and Climate Sensitivity: Experiences from the ECHAM Global Model. GlobCloud Workshop 'Clouds: From satellite observations to atmospheric modelling', Berlin, März 2009.
- Ponater M., Dietmüller S., Stuber N., Shine K., Highwood E. und Rädel G., 2009: Indications of distinctive efficacies for transport related ozone perturbations. *Proceedings of 2nd International Conference on Transport, Atmosphere and Climate (TAC), Aachen and Maastricht, Juni 2009* .
- Ponater M., Grewe V., Sausen R., Schumann U., Pechtl S., Highwood E. und Stuber N., 2006: Climate sensitivity of radiative impacts from transport systems. *Proceedings of an International Conference on Transport, Atmosphere and Climate (TAC), Oxford, Juni 2006* .
- Ponater M., Sausen R., Feneberg B. und Roeckner E., 1999: Climate effect of ozone changes caused by present and future air traffic. *Climate Dyn.* **15**: 613–642.
- Portmann R.W. und Solomon S., 2007: Indirect radiative forcing of the ozone layer during the 21st century. *Geophys. Res. Lett.* **34**: L02813.
- Prinn R.G., Huang J., Weiss R., Cunnold D.M. , Fraser P., Simmonds P., Mc-Culloch A., Harth C., Salameh P., O Doherty S., Wang R., Porter L. und Mille B., 2001: Evidence for substantial variations of atmospheric hydroxyl radicals in the past two decades,. *Science* **292**: 1882–1888.

- Raes F., Liao H., Chen W.T. und Seinfeld J.H., 2010: Atmospheric chemistry-climate feedbacks. *J. Geophys. Res.* **115**: D12121.
- Ramanathan V. und Dickinson R., 1979: The role of stratospheric ozone in the zonal and seasonal radiative energy balance of the Earth-troposphere system. *J. Atmos. Sci.* **36**: 1084–1104.
- Ringer M., Mc Avaney B., Andronova N., Buja L., Esch M., Ingram W., Li B., Quaas J., Roeckner E., Senior C., Soden B., Volodin E., Webb M. und K.D W., 2006: Global mean cloud feedbacks in idealized climate change experiments. *Geophys. Res. Lett.* **33**: L07718.
- Roeckner E., Arpe K., Bengtsson L., Brinkop S., Duemenil L., Esch M., Kirk E., Lunkeit F., Ponater M. und Rockel B., 1992: *Simulation of the present-day climate with the ECHAM model: Impact of model physics and Resolution*. Report 93, Max-Planck-Institut für Meteorologie.
- Roeckner E., Arpe K., Bengtsson Christoph M., Claussen M., Duemenil L., Esch M., M. Giorgetta M., Schlese U. und Schulzweida U., 1996: *The atmospheric general circulation model ECHAM4: Model description and simulation of present-day climate*. Report 218, Max-Planck-Institut für Meteorologie.
- Roeckner E., Bäuml G., Bonaventura L., Brokopf R., Esch M., Giorgetta M., Hagemann S., Kirchner I., Kornblueh L., Manzini E., Rhodin A., Schlese U., Schulzweida U. und Tompkins A., 2003: *The atmospheric general circulation model ECHAM5: Part 1. Model description*. Report 349, Max-Planck-Institut für Meteorologie.
- Roeckner E., Siebert T. und Feichter J., 1995: Climate response to anthropogenic sulfat forcing simulated with a general circulation model. In: R.J. Charlson, J. Heintzenberg (Hrsg.): *Aerosol forcing of climate*, Verlag John Wiley&Sons, Chichester, New England, USA, 349-362.
- Sander R., Kerkweg A., Jöckel P. und Lelieveld J., 2005: Technical Note: The new comprehensive atmospheric chemistry module MECCA. *Atmos. Chem. Phys.* **5**: 445–450.
- Sandu A. und Sander R., 2006: Technical Note: Simulating chemical systems in Fortran90 and Matlab with kinetic preprocessor kpp-2.1. *Atm. Chem. Phys.* **6**: 187–195.
- Santer B., Sausen R., Wigley T., Boyle J., Achuta Rao K., Doutriaux C., Hansen J., Meehl G., Roeckner E., Ruedy R., Schmidt G. und Taylor K., 2003: Behavior of tropopause height and atmospheric temperature in models, reanalyses, and observations: Decadal changes. *Geophys. Res.* **108**: 4002.
- Sausen R. und Santer B., 2003: Use of changes in tropopause height to detect human influences on climate. *Meteorol. Z.* **12**: 131–136.
- Schlesinger M., 1988: Quantitative analysis of feedbacks in climate model simulations of CO₂-induced warming. In: M.E. Schlesinger (Hrsg.): *Physically-Based Modelling and Simulation of Climate and Climate Change: Proceedings of the NATO Advanced Study Institute*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht; Niederlande, 653-735.

- Shindell D., Faluvegi G., Bell N. und Schmidt G., 2005: An emissions-based view of climate forcing by methane and tropospheric ozone. *Geophys. Res. Lett.* **32**: L04803.
- Shine K., Cook J., Highwood E. und Joshi M., 2003: An alternative to radiative forcing for estimating the relative importance of climate change mechanisms. *Geophys. Res. Lett.* **30**: 2047.
- Soden B. und Held I., 2006: An assessment of climate feedbacks in coupled ocean-atmospheric models. *J. Climate* **19**: 3354–3360.
- Sokolov A., 2006: Does model sensitivity to changes in CO₂ provide a measure of sensitivity to the forcing of different nature. *J. Climate* **19**: 3294–3306.
- Solomon S., Qin D., Manning M., Chen Z., Marquis M., Averyt K., Tignor M. und Miller H., 2007: *IPCC, 2007: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Steil B., Dameris M., Brühl C., Crutzen P., Grewe V., Ponater M. und Sausen R., 1998: Development of a chemistry module for GCMs: First results of a multiannual integration. *Ann. Geophys.* **16**: 205–228.
- Stenke A., 2006: Stratosphärischer Wasserdampf in einem gekoppelten Klima-Chemie-Modell: Simulation, Trends und Bedeutung für die Ozonchemie. Dissertation, Fakultät für Physik, Ludwig-Maximilians-Universität München, DLR Forschungsbericht 2006-04, ISSN 1434-8454, Köln.
- Stenke A. und Grewe V., 2005: Simulation of stratospheric water vapor trends: impact on stratospheric ozone chemistry. *Atmos. Chem. Phys.* **5**: 1257–1272.
- Stephens G., 2005: Cloud Feedbacks in the Climate System: A Critical Review. *J. Climate* **18**: 237–273.
- Stevenson D., Doherty R., Sanderson M., Johnson C., Collins W. und Derwent R., 2005: Impacts of climate change and variability on tropospheric ozone and its precursors. *Faraday Discuss.* **130**: 41–57.
- Storch H. und Zwiers F., 1999: *Statistical analysis in climate research*. Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Stuber N., 2001: Ursachen für die Variabilität des Klimasensitivitätsparameters für räumliche inhomogene Ozonstörungen. Dissertation, Universität Hamburg, DLR Forschungsbericht 2003-03, ISSN 1434-8454, Köln.
- Stuber N., Ponater M. und Sausen R., 2005: Why radiative forcing might fail as a predictor of climate change. *Climate Dyn.* **24**: 497–510.
- Stuber N., Sausen R. und Ponater M., 2001: Stratosphere adjusted radiative forcing in a comprehensive climate model. *Theor. Appl. Climatol.* **68**: 125–135.

- Sundquist H., 1978: A parameterisation scheme for non-convective condensation including prediction of cloud water content. *Q.J.R. Met. Soc.* **104**: 677–690.
- Sundquist H., Berge E. und Kristjansson J., 1989: Condensation and cloud parameterisation studies with a mesoscale numerical weather prediction model. *Mon. Wea. Rev.* **117**: 1641–1657.
- Taylor K., Williams D. und Zwiers F., 2000: *The sea surface temperature and sea ice concentration boundary condition for AMIP II simulation*. Report 60, PCMDI.
- Tiedtke M., 1989: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models. *Mon. Wea. Rev.* **117**: 1779–1800.
- Tompkins A.M., 2002: A prognostic parameterization for the subgrid-scale variability of water vapor and clouds in large-scale models and its use to diagnose cloud cover. *J. Atmos. Sci.* **59**: 1917–1942.
- Tost H., Jöckel P., Kerkweg A., Sander R. und Lelieveld J., 2006: Technical note: A new comprehensive SCAVenging submodel for global atmospheric chemistry modelling. *Atmos. Chem. Phys.* **6**: 565–574.
- Weldron R., Peagle J. und Horel J., 1996: Sensitivity of a spectrally filtered and nudged limited area model to outer model options. *Mon. Wea. Rev.* **124**: 529–547.
- Wetherald R. und Manabe S., 1988: Cloud feedback processes in a general circulation model. *J. Atmos. Sci.* **45**: 1397–1415.
- Wigley T., Jones P. und Raper S., 1997: The observed global warming record: What does it tell us? *Prod. Natl. Acad. Sci., USA*, **94**: 8314–8320.
- Williams K.D., Senior C. und Mitchell J., 2001: Transient climate change in the Hadley Centre models: The role of physical processes. *J. Climate* **14**: 2659–2674.
- Winton M., 2006: Surface albedo feedback estimates for the AR4 climate models. *J. Climate* **19**: 359–365.
- Yoshimori M. und Broccoli A., 2008: Equilibrium Response of an Atmosphere. Mixed Layer Ocean Model to Different Radiative Forcing Agents: Global and Zonal Mean Response. *J. Climate* **21**: 4399–4423.
- Zwiers F. und von Storch H., 1995: Taking serial correlation into account in tests of the mean. *J. Climate* **8**: 336–351.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all jenen bedanken, die im besonderen Maße zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

Mein herzlicher Dank geht an meinen Doktorvater Herrn Prof. Dr. Robert Sausen, der mir die Bearbeitung dieses Themas ermöglichte und mir mit zahlreichen hilfreichen Anregungen während meiner Doktorarbeit zur Seite stand.

Auch bei Herrn Prof. Dr. Ulrich Schumann möchte ich für die Möglichkeit, meine Doktorarbeit am Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt durchzuführen, bedanken.

Mein Dank gilt auch Herrn Prof. Dr. Bernhard Mayer für seine Bereitschaft diese Arbeit zu begutachten.

Ein ganz besonders großer Dank geht an Herrn Dr. Michael Ponater für die intensive Betreuung meiner Doktorarbeit, für seine Bereitschaft und Geduld Fragen und Unklarheiten meinerseits immer zu klären, für konstruktive Kritik und viele Anregungen. Sein Verständnis und seine Unterstützung auch in schwierigen Situationen verdient ein großes Dankeschön.

Bedanken möchte ich mich auch bei Herrn Dr. Patrick Jöckel für die schnelle und geduldige Hilfe bei allen Problemen mit dem Modellsystem.

Meinen Kollegen aus der Abteilung 1 möchte ich für die angenehme Arbeitsatmosphäre danken. Besonderer Dank geht an meine diversen Zimmerkollegen: Lisa, Christine, Simon, Valentina, Christina, Joseph, Eva und Carolin. Außerdem natürlich ein Dankeschön an Kirstin, Christine, Rudi, Simon und Ingo für nichtfachliche Gespräche und Unternehmungen während meiner Promotionszeit.

Meiner Familie gilt mein ganz besonderer Dank: Mein Mann Roland hat mich während meiner Doktorarbeit immer motiviert und unterstützt und meine Tochter Theresa hat mich nach der Arbeit immer mit ihrer guten Laune empfangen. Ein großes Dankeschön geht an meine Mama, die stets als Babysitter eingesprungen ist, wenn Theresa nicht in Kinderkrippe gehen konnte.