

# **Erfassung des atmosphärischen Trübungszustands und seiner zeitlichen Veränderung infolge von Emissionsabnahmen auf Grund sich vollziehender Strukturveränderungen in Mitteldeutschland**

**W. von Hoyningen-Huene, M. Stettler**

## **Abstract**

In the SANA project (Scientific Attendance Program for the Rehabilitation of the Atmospheric Environment in the German New Federal Lands) different kinds of turbidity measurements are used to characterize the change of the turbidity state of the atmospheric boundary layer produced by atmospheric aerosols within the time span between 1990 and 1995. For this characterization the following turbidity measurements are used:

- 1.) continuous measurements of the humidity corrected aerosol extinction coefficient obtained with a He-Ne-Laser transmission path (length: 810 m, wavelength: 0.633  $\mu\text{m}$ ) within the urban boundary layer of Leipzig,
- 2.) direct measurements of the particulate matter (PM10) concentration,
- 3.) combined measurements of spectral aerosol optical thickness (within the spectral range of 0.35 - 1.1  $\mu\text{m}$ ) and sky brightness in the solar almucantar plane for cloud free situations,
- 4.) integrated radiation flux density measurement (Global radiation).

In all measurements a decrease of the atmospheric aerosol turbidity could be stated in the time span of 1990/91 to 1995: for the extinction coefficient and the particulate matter within the boundary layer of approximately 60 %, the turbidity coefficient derived from the spectral aerosol optical thickness (corrected for the influence of the stratospheric volcanic aerosol by the Pinatobo) give a reduction of 57 %.

The combined measurements of spectral aerosol optical thickness and the sky brightness are used for the determination of the main climate-relevant aerosol parameters: aerosol phase function, asymmetry parameter, columnar aerosol size distribution and apparent columnar refractive index. The largest change in the columnar aerosol size distribution could be stated in the size range of 0.2 - 0.8  $\mu\text{m}$  (radius), also a reduction of approximately 60 %.

Together with the measurements of the downwelling flux density an estimation of the aerosol absorption in kind of the imaginary part of the refractive index is made. The imaginary part is reduced in the same way: 1991:  $k = 0.021$ , 1994 and 1995  $k = 0.008$ .

A first estimation of the anthropogenic shortwave radiative forcing produced by the old East German air pollution of the on the basis of these data gives a change in the shortwave radiative balance of approximately  $-8 \text{ W/m}^2$ .

## Zusammenfassung

Im Rahmen des SANA Projekts (Wissenschaftliches Begleitprogramm zur Sanierung der Atmosphärenumwelt) wurden verschiedene Trübungsmessungen verwendet, um die Veränderungen im Trübungszustand in der atmosphärischen Grundschicht, hervorgerufen durch Aerosole, im Zeitraum von 1990 bis 1995 charakterisieren zu können. Dazu wurden folgende Trübungsmessungen verwendet:

- 1.) kontinuierliche Messungen des feuchtekorrigierten Aerosolextinktionskoeffizienten mit Hilfe einer Laser-Transmissionsstrecke (Länge 810 m, He-Ne-Laser Wellenlänge: 0.633  $\mu\text{m}$ ) in der urbanen Grundschicht von Leipzig,
- 2.) direkte Messungen der Schwebstaubkonzentration,
- 3.) kombinierte Messungen von spektraler optischer Dicke des Aerosols (im Spektralbereich von 0.35 - 1.1  $\mu\text{m}$ ) und Himmelshelligkeitsfunktion im Almkantar unter wolkenfreien Bedingungen,
- 4.) integrale Strahlungsflußdichtemessungen (Globalstrahlung).

In allen Messungen konnte im Zeitraum 1990/91 bis 1995 eine Abnahme der Aerosoltrübung festgestellt werden: Für den Extinktionskoeffizienten und die Schwebstaubkonzentration in der urbanen Grundschicht ungefähr 60 %, für den aus den spektralen optischen Dicken des Aerosols abgeleiteten Trübungskoeffizienten (korrigiert um den Beitrag des stratosphärischen Vulkanaerosols des Pinatubo) 57 %.

Die kombinierten Messungen von spektraler optischer Dicke des Aerosols und der Himmelshelligkeitsfunktion dienten der Bestimmung der wesentlichen klimarelevanten Aerosolparameter: Aerosolphasenfunktion, Asymmetrieparameter, columnarer Aerosolgrößenverteilung und columnarer Brechungsindex des Aerosols. Die größte Änderung in der columnaren Aerosolgrößenverteilung ist im Radienbereich 0.2 - 0.8  $\mu\text{m}$  festgestellt worden, ebenfalls eine Reduktion von ungefähr 60 %.

Zusammen mit den Messungen der abwärtsgerichteten Strahlungsflußdichte wurde eine Abschätzung der Aerosolabsorption in Form des Imaginärteils des Brechungsindex vorgenommen. Der Imaginärteil verringert sich in gleicher Weise: 1991:  $k = 0.021$ , 1994 und 1995:  $k = 0.008$ .

Auf der Grundlage dieser Daten konnte der anthropogene Anteil des kurzwelligen Strahlungsforcings, das durch die Luftverunreinigung unter den alten Ostdeutschen Bedingungen hervorgerufen wird, mit ungefähr  $-8 \text{ W/m}^2$  Änderung in der kurzwelligen Strahlungsbilanz abgeschätzt werden.

## 1. Zielsetzung

Vorliegende Untersuchungen sind Bestandteil des BMBF Verbundprojekts SANA (Wissenschaftliches Begleitprogramm zur Sanierung der Atmosphäre über den neuen Bundesländern), dessen Ziel es war, den Zustand der atmosphärischen Umweltbelastung in den neuen Bundesländern beim Übergang von der alten DDR-Energiewirtschaft auf Braunkohlebasis bis zum Wirksamwerden von Modernisierungsmaßnahmen und gesetzlichen Regelungen zur Emissionsbegrenzung zu verfolgen. Die Trübungsuntersuchungen stellen ein Teilprojekt von SANA dar, das in Kooperation von Universität Leipzig und dem Institut für Troposphärenforschung im Zeitraum von 1991 bis 1995 durchgeführt wurde.

Die Zielstellung des Projekts bestand in der Untersuchung des Einflusses von Aerosolen auf den atmosphärischen Trübungszustand in der Region um Leipzig als einer Gegend, die durch große Umstellungen in der industriellen Struktur und der Energiegewinnung im Verlaufe der wirtschaftlichen Wiedervereinigungsprozesses gekennzeichnet ist.

Der Trübungszustand dient hier einerseits als Indikator für die Belastung der Atmosphäre mit Beimengungen bzw. Schadstoffen in der Region, andererseits gestattet seine Analyse die Bestimmung der wesentlichen optischen und strukturellen klimarelevanten Aerosolparameter, die für eine Abschätzung des direkten Aerosoleinflusses auf den Strahlungsterm in der Energiebilanzgleichung benötigt werden und damit eine Gelegenheit bieten, an Hand von experimentellen Untersuchungen Angaben über den anthropogenen Beitrag am negativen Strahlungsforcing zu erhalten, den die auf Braunkohlenverarbeitung basierende wirtschaftliche Struktur der ehemaligen DDR hatte.

Darüberhinaus dienen die Untersuchungen dazu Modellvorstellungen über das atmosphärische Aerosol ('urban - industrial') auf ihre Verwendbarkeit in einer durch Braunkohlenverbrennung geprägten urbanen Grundschicht zu prüfen.

Somit wurden die Untersuchungen auf folgende speziellen Ziele gerichtet:

- 1.) die zeitliche Veränderung des Trübungszustands, vor allem in seinem Langzeitverhalten im Zeitraum von 1991 bis 1994/95, um die Auswirkungen der Strukturveränderungen und der Veränderungen im Brennstoffeinsatz zu erhalten,
- 2.) Bestimmung der Aerosolcharakteristika (speziell optische und strukturelle Kenngrößen des Aerosols, wie spektrale optische Dicke bzw. Extinktionskoeffizient, Phasenfunktion, Absorption, sowie Größenverteilung und Brechungsindex), die als Ursache für die beobachtete Art der Veränderung in Frage kommen.
- 3.) Mögliche Auswirkungen auf Klimafaktoren, insbesondere Abschätzung der anthropogen verursachten Änderung von Strahlungsflüssen und ihre Auswirkung auf die kurzweilige Strahlungsbilanz.

Als Basis für die Untersuchungen sollten verschiedene Messungen dienen, die den Trübungszustand sowohl in der stark belasteten urbanen Grundsicht als auch in der gesamten atmosphärischen Säule charakterisieren:

- zeitlich kontinuierliche Messungen mit Hilfe einer LASER-Transmissionsstrecke zur Bestimmung des Extinktionskoeffizienten des atmosphärischen Aerosols in der urbanen Grundsicht,
- Spektralradiometermessungen der direkten Sonnenstrahlung und des Himmelslichts (im Almkantar) im Wellenlängenbereich von 0,35 - 1,1  $\mu\text{m}$  zur Ermittlung der spektralen Charakteristika des atmosphärischen Aerosols, wie optische Dicke und weiterer columnarer klimarelevanter Aerosolparameter, wie columnare Phasenfunktion, Aerosolgrößenverteilung und Brechungsindex,
- Messungen integraler abwärtsgerichteter Strahlungsflüsse (Global- und Himmelsstrahlung), um aerosolbedingte Veränderungen in den Strahlungsflüssen zu erfassen.
- Messungen an direkten Aerosolproben in der urbanen Grundsicht zur Bestimmung der Schwebstaubkonzentration und des komplexen Brechungsindex der Aerosolproben.

Die Messungen sind so angesetzt, daß sie sich hinsichtlich der Zielstellungen in ihren Ergebnissen verbinden und ergänzen und Schließungen untereinander erlauben, wofür Qualitätssicherungsmaßnahmen unerläßliche Voraussetzungen sind.

Diese Datenbasis erlaubt es dann mit Hilfe von Inversionsprozeduren die Aerosolcharakteristika zu bestimmen, die in der Lage sind, die Modifikation des Strahlungsfelds durch das atmosphärische Aerosol zu beschreiben und Aussagen bezüglich der Klimarelevanz abzuleiten, wie

- zeitliche Variabilität und Trends in den optischen Charakteristika selbst (Extinktionskoeffizient, spektrale Optische Dicke, Phasenfunktion), wie auch in den direkten Aerosolparametern (Masse, spezifische Extinktion),
- Größe der Änderungsbeträge im Rahmen des SANA Zeitraums,
- Charakterisierung der columnaren Aerosolgrößenverteilungen und des Brechungsindex,
- Abschätzungen von aerosolbedingten Änderungen in der kurzwelligen Strahlungsbilanz und dem abwärtsgerichteten Strahlungsfluß.

## **2. Durchgeführte Arbeiten**

Die durchgeführten Arbeiten gliedern sich in entsprechende experimentelle Teile, die dem Ziel dienen, die entsprechenden Messungen vorzubereiten, vorzunehmen und die gewonnenen Daten für die Weiterverwendung zur Bestimmung der gesuchten Aerosolparameter aufzubereiten. Daneben sind Arbeiten durchgeführt worden, die zur Weiterentwicklung der

Bestimmungsmethoden (im wesentlichen der Inversionsmethoden) für die Aerosolparameter aus den experimentellen Untersuchungen dienen, die dann auf die gewonnenen Daten angewandt wurden. Letztendlich wurden Strahlungstransferrechnungen mit den ermittelten Aerosolparametern durchgeführt, die eine Abschätzung des Aerosoleinflusses auf die Strahlungsflüsse gestatteten.

## 2.1. Durchgeführte experimentelle Arbeiten

Die durchgeführten experimentellen Arbeiten sind im folgenden aufgeführt:

1.) Aufbau und Betrieb einer LASER-Transmissionsstrecke auf der Basis eines HeNe-LASERs mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 0.633 \mu\text{m}$  zur kontinuierlichen Messung des Extinktionskoeffizienten der urbanen Grundsicht. Die Meßstrecke erstreckt sich vom Gebäude des Instituts für Meteorologie der Universität Leipzig zum Universitätshochhaus und hat eine Länge von ca.  $l = 810 \text{ m}$  und führt von einer Höhe von 20 m (Sender) bis in eine Höhe von 120 m (Empfänger). Der Betrieb der Transmissionsstrecke schließt ihre laufende Kalibrierung ein, damit der Sensorteil der Anlage stets an die Strahlungsquelle (LASER) angeschlossen ist. Die Daten wurden als Minutenwerte ausgezeichnet und zu Halbstundenwerten verdichtet. Nachdem die erforderlichen Korrekturen (Abzug des Anteils der Rayleighstreuung, Korrektur des Feuchteinflusses) erhält man eine Zeitreihe des Extinktionskoeffizienten  $\sigma_A$  des atmosphärischen Aerosols in der urbanen Grundsicht der Stadt Leipzig.

Mit diesem Meßsystem liegen Halbstundenmittelwerte (und die zu Monatswerten verdichteten Ergebnisse) von März 1991 bis Ende 1995 vor. Von Mai 1994 bis zum Jahresende mußten die Messungen wegen der Fassadenrenovierung am Gebäude des Instituts für Meteorologie aus Arbeitsschutzgründen zeitweilig unterbrochen werden. Grundprinzipien und wesentliche Ergebnisse, die mit diesem Meßsystem gewonnen wurden, sind bei STETTLER & VON HOYNINGEN-HUENE (1994) und UHLIG et al. (1994) dargestellt.

2.) Aufbau, Weiterentwicklung und Betrieb von Vielkanal-Spektralradiometern ASP (Atmosphären-Spektral-Photometer) zur Messung der direkten spektralen Sonnen- und Himmelsstrahlung. Die Messungen erfolgten an wolkenlosen Tagen (Tagesabschnitten) und lieferten aus den Meßgrößen a) die spektrale optische Dicke des Aerosols  $\delta_A(\lambda)$  und b) die Strahldichtevertelung des Himmelslichts im Almukantar  $L(\lambda, \psi, h_0)$ . Die Anzahl der Spektralkanäle wurde von 40 auf 90 erhöht, so daß die erforderlichen Korrekturen der Beiträge der atmosphärischen Spurengase ( $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ) aus den in den Meßdaten erfaßten Absorberbanden der Spurengase abgeleitet werden können. Der Spektralbereich reicht von  $\lambda = 0.35 - 1.1 \mu\text{m}$  mit Bandbreiten von  $\Delta\lambda = 0.008 - 0.015 \mu\text{m}$ .

Zur Qualitätssicherung wurden die Spektralradiometer in regelmäßigen Abständen verschiedenen Kalibrierungsprozeduren unterzogen:

- a) extraterrestrischer Anschluß durch Langley-Plot auf der Zugspitze,
- b) Überprüfung der Wellenlängenstabilität der Kanäle im Labor,
- c) Bestimmung des Temperaturverhaltens des Systems Filter - Si-Diode - Primärverstärker im

Klimaschrank (im MO Lindenberg des DWD).

Die Messungen zur Bestimmung der optischen Dicken und der Himmelshelligkeit erfolgten an wolkenfreien Tagen z.T. auf dem Dach des Instituts für Meteorologie (1990-1992 und ab 1994) und im Gelände des Instituts für Troposphärenforschung (1993) und lieferten kombinierte Datensätze von spektraler optischer Dicke des Aerosols und der Strahldichteverteilung im Almkantar.

Zeitweilige Meßkampagnen in Melpitz dienten der Untersuchung des Verhältnisses Stadt - Umland, wofür zusätzlich auch Daten des DWD vom MO Lindenberg herangezogen wurden. Letztere waren jedoch nur auf die spektrale optische Dicke beschränkt und konnten nicht für die Bestimmung von columnarer Phasenfunktion, Brechungsindex und Aerosolgrößenverteilung verwendet werden.

Ebenso wurden Meßkampagnen durchgeführt, bei denen 2 Spektralradiometer vertikal versetzt (100 m) betrieben wurden. Dazu wurde zeitweilig eine zweite Meßstelle auf dem Dach des Universitätshochhauses eingerichtet, um aus der Differenz der spektralen optischen Dicke, den Spektralverlauf des Extinktionskoeffizienten in der urbanen Grundsicht als Ergänzung zu den kontinuierlichen Messungen mit Hilfe der LASER-Transmissionsstrecke zu erhalten, da die monochromatischen Ergebnisse der Transmissionsstrecke keine Rückschlüsse auf das spektrale Verhalten der Aerosolextinktion in der atmosphärischen Grundsicht zulassen.

3.) Messung der abwätsgerichteten kurzwelligen Strahlungsflüsse (getrennt als Globalstrahlung und diffuse Himmelsstrahlung). Als Geräte dienten Pyranometer nach Sonntag (am Institut für Meteorologie) und CM-11 (am Institut für Troposphärenforschung). Die Messungen dienten im erster Linie als Validierungsgrundlage für die Modellierung von Strahlungsflüssen mit den durch die Inversionsmethoden bestimmten klimarelevanten Aerosolparametern. Qualitätssichernde Maßnahmen waren jährliche Kalibrierungsmessungen mit einem Panzeraktinometer nach Sonntag.

4.) Gewinnung von Aerosolfilterproben (1991-1992) für die Auswertung mit der photometrischen Methode nach HÄNEL zur unabhängigen Bestimmung des Extinktionskoeffizienten und des Brechungsindex des atmosphärischen Aerosols in der urbanen Grundsicht, vgl. HÄNEL (1994). Die Ergebnisse der Filterproben, die mit Spektralradiometermessungen (2.) gekoppelt waren, gestatteten eine Kontrolle der Extinktionskoeffizienten aus den LASER-Transmissionsmessungen (1.) und des Brechungsindex aus den Inversionsrechnungen.

5.) Das zeitliche Verhalten des Extinktionskoeffizienten aus den LASER-Transmissionsmessungen ist mit dem anderer Aerosolcharakteristika der urbanen Grundsicht verglichen worden. Dazu wurden direkte Schwebstaubmessungen des Umweltfachamts Leipzig verwendet, die nach dem  $\beta$ -Strahlenabsorptionsprinzip gewonnen wurden. Die Schwebstaubkonzentration aus den Daten des Umweltfachamtes gestattet zusammen mit dem Extinktionskoeffizienten die Berechnung einer spezifischen Extinktion, die als Indikator für Veränderungen in der Zusammensetzung und Struktur des Aerosols in der urbanen Grundsicht dient, vgl. UHLIG & VON HOYNINGEN-HUENE (1993), STETTLER & VON HOYNINGEN-HUENE (1994).

Die mit den vorstehend aufgeführten experimentellen Untersuchungen erhaltenen Daten dienen als Basis für die im folgenden Abschnitt dargestellten numerischen Analysen und Modellierungen.

## 2.2. Durchgeführte numerische Analysen und Modellierungen

Die durchgeführten numerischen Analysen dienen der Bestimmung der klimarelevanten Aerosolparameter aus den erhaltenen experimentellen Daten, hauptsächlich mit dem in dem Zeitraum entwickelten Gekoppelten Inversions- und Strahlungstransfer-Programm CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer), vgl. WENDISCH & VON HOYNINGEN-HUENE (1994), VON HOYNINGEN-HUENE & WENDISCH (1994). Das Programmpaket liefert für den Fall der besten Anpassung von Inversionsergebnissen und Strahlungstransferrechnungen an die gemessenen optischen Daten den Realteil des columnaren Brechungsindex, die columnare Phasenfunktion und die columnare Aerosolgrößenverteilung. Damit liefert CIRATRA die wichtigsten atmosphärischen Aerosolparameter, die Input-Größen der Strahlungstransfergleichung sind.

Zusammen mit der gemessenen spektralen optischen Dicke sind die Ergebnisse aus den numerischen Analysen mit dem CIRATRA-Programmpaket die Basis für Modellierungen von integralen und spektralen Strahlungsflüssen. Für diesen Zweck wurde auf der Grundlage des Strahlungstransfercodes von NAKAJIMA & TANAKA (1988) das Programm BILANZ entwickelt, das aus 550 monochromatischen Spektralkanälen, den Beitrag des atmosphärischen Aerosols, dem der 'Normalatmosphäre' mit streuenden Molekülen und absorbierenden Gasen hinzufügt und die abwärts- und aufwärtsgerichteten Strahlungsflüsse sowie die kurzweilige Strahlungsbilanz unter Berücksichtigung der Häufigkeit der unterschiedlichen Sonnenstände berechnet. Damit wurde der anthropogene Beitrag zum negativen Strahlungsforcing abgeschätzt, der durch die durch intensive Braunkohlenverbrennung belastete Atmosphäre zu Zeiten der ehemaligen DDR hervorgerufen wurde.

## 3. Ergebnisse

Die Darstellung der Ergebnisse erfolgt entsprechend dem unterschiedlichen Bezug der verschiedenen Messungen:

- Ergebnisse zur Untersuchung der urbanen Grundsicht, wie
  - den Messungen mit der LASER-Transmissionsstrecke,
  - ihre Beziehungen zu den Schwebstaubkonzentrationsmessungen des Umweltfachamts
 und
  - die Studien zur spektralen Extinktion in der urbanen Grundsicht.
- Ergebnisse der columnaren Messungen mit den Spektralradiometern

### 3.1. Ergebnisse der LASER-Transmissionsmessungen

#### 3.1.1. Aufbau und Grundprinzip der LASER-Transmissionsmessungen

Die LASER-Transmissionsstrecke ist schematisch in Abb. 1 dargestellt. Der LASER-Strahl wird durch ein Teleskop auf den 810 m entfernten Hauptsensor fokussiert und dort empfangen. Durch einen Strahlsucher werden die Bewegungen des Strahls, die durch Szintillation und Refraktion hervorgerufen werden ausgeglichen und der ankommende Strahl immer im Zentrum des Meßsensors gehalten. Das ankommende Signal wird dann verstärkt und aufgezeichnet. Zur Kontrolle des Ausgangssignals des He-Ne-LASERs wird mit einem Strahlteiler ein Teil des Strahls auf einen Referenzempfänger ausgeblendet und dort aufgezeichnet. Der Extinktionkoeffizient des atmosphärischen Aerosols  $\sigma_A$  auf dem Transmissionspfad ergibt sich als

$$\sigma_A = \ln(L_0 / L_S) / l - \sigma_R$$

Dabei ist  $L_0$  die Ausgangsleistung des LASERs nach dem Durchgang durch das Teleskop,  $L_S$  die am Hauptsensor ankommende Leistung nach passieren des Transmissionspfades und  $l$  die Länge des Transmissionspfades (hier  $l = 810$  m). Um die Aerosolextinktion zu erhalten ist der Beitrag der Rayleighstreuung am Extinktionskoeffizienten  $\sigma_R$  von der Gesamtextinktion abzuziehen ( $\sigma_R = 0.0066 \text{ km}^{-1}$ ). Gasabsorption wird bei der LASER-Wellenlänge von 0.633 nicht berücksichtigt. Die Kalibrierung erfolgt durch definierte Veränderung des Extinktionkoeffizienten im Strahl (Glasplatten mit bekannter Transmission) und Extrapolation zur Extinktion  $\sigma = 0$ .

Das Meßsystem zeichnete für die Untersuchungen während SANA die ankommende Strahlleistung im Minutenabstand auf, die zu 10 Minuten-Mittelwerten für die weitere Auswertung verdichtet wurden, die dann vom Einfluß der relativen Feuchte und anderer meteorologischer Ereignisse zu bereinigen waren

In den so gewonnenen Extinktionskoeffizienten sind alle Effekte, die sich auf dem Transmissionspfad ereignen, enthalten. Niederschlagsereignisse (Regen, Schnee), ebenso dichter Nebel müssen im Rahmen der weiteren Auswertung ausklassifiziert werden. Es verbleibt der Feuchteeinfluß auf das Aerosol der durch die Parametrisierung von HÄNEL (1984) berücksichtigt wird

$$\sigma_{A\text{-korr}} = \sigma_{A\text{-mess}} * (1 - f)^{(a + \ln(b)/\ln 0.3)}$$

Für relative Feuchten  $f > 0.7$  fällt der 2. Term im Exponenten weg. Die beste Übereinstimmung mit den Extinktionskoeffizienten aus den Filterproben ergab sich mit dem Modell 'urban' von HÄNEL ( $a = 0.754$ ,  $b = 0.675$ ), vgl. UHLIG & VON HOYNINGEN-HUENE (1993).

## Scheme of the LASER-Transmission Path

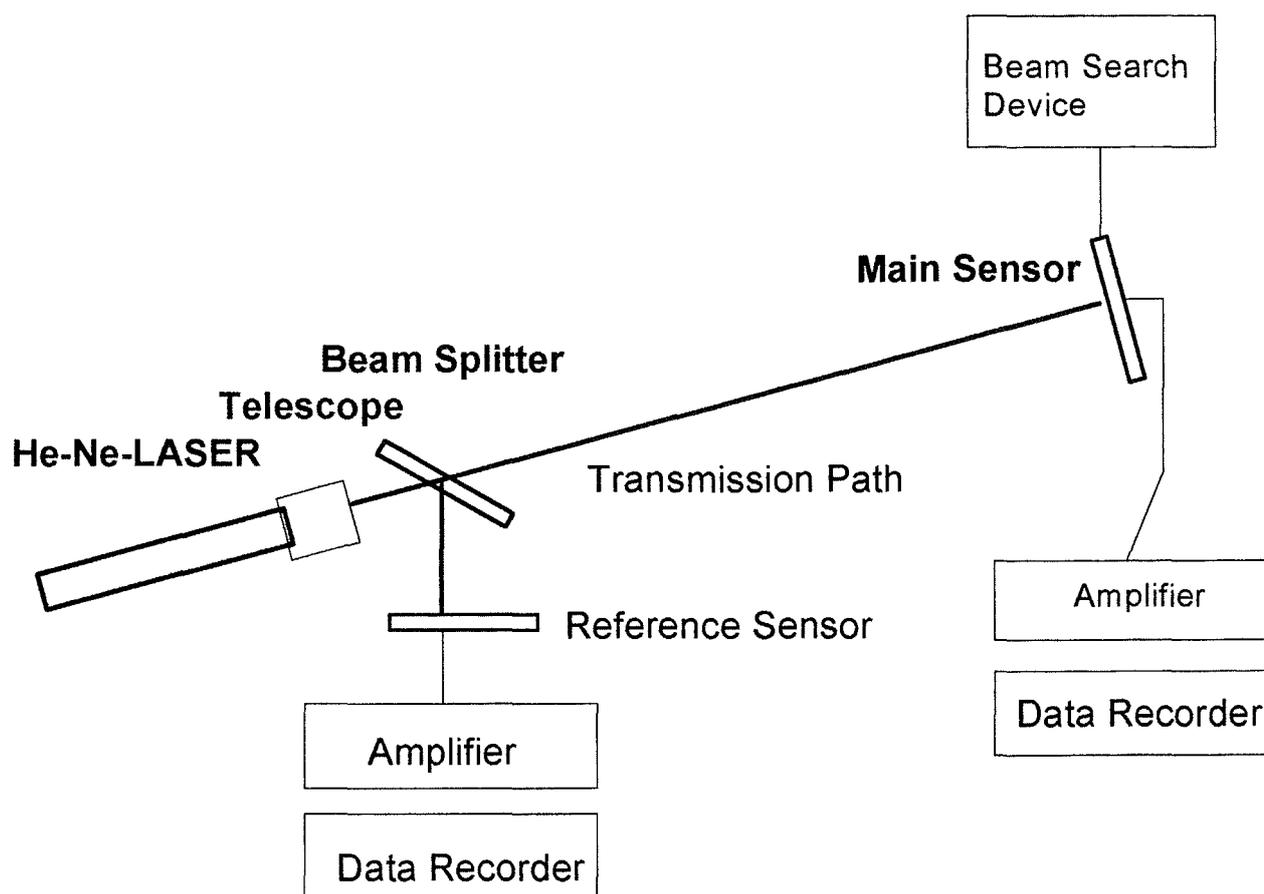


Abb.:1  
Schematischer Aufbau der LASER-Transmissionsstrecke

Als Beispiel für die zeitliche Variabilität und den Einfluß der Feuchtekorrektur dient Abb.2, die ebenfalls die gute Übereinstimmung der korrigierten Extinktionskoeffizienten mit denen aus den Filterproben von HÄNEL zeigt. Nebenbei sei auf die ausgeprägten Tagesgänge in der ersten Hälfte des dargestellten Zeitabschnitts mit hohen Extinktionskoeffizienten in den späten Nacht und frühen Morgenstunden und Minima um die Mittagszeit hingewiesen. Ebenso deutlich ist der Einfluß der Advektion am 19.3.91. Durch einen Frontdurchgang wird im Zuge eines Luftmassenwechsels werden die hohen Belastungen der ersten Hälfte des Zeitraums ausgewaschen und wegtransportiert.

### 3.1.2. Ergebnisse der Langzeitaufzeichnung

Die Ergebnisse der Langzeitaufzeichnung sind in der Zeitreihe in Abb. 3 zusammengefaßt und bei STETTLER & VONHOYNINGEN-HUENE (1994) dargestellt.

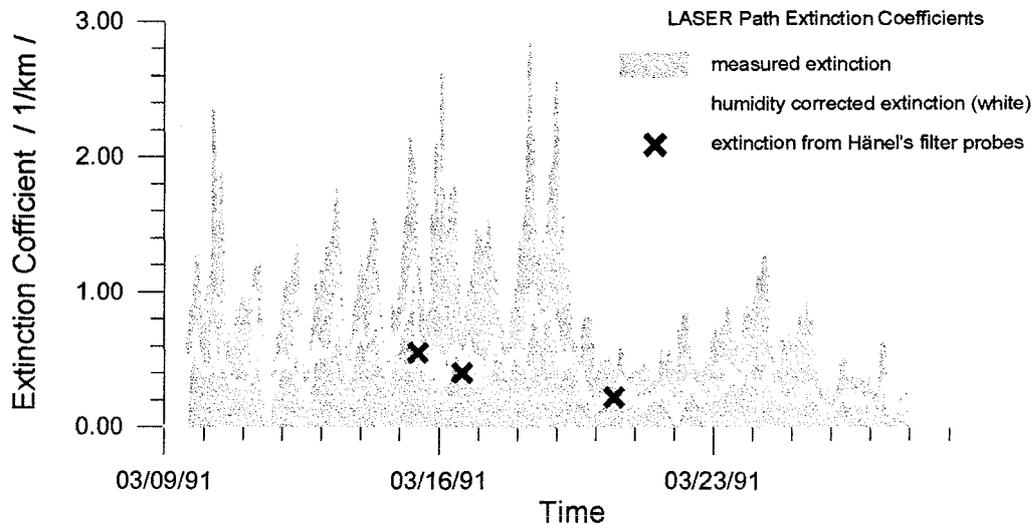


Abb.: 2

Zeitlicher Verlauf des mit Hilfe der LASER-Transmissionstrecke registrierten Aerosol-Extinktionskoeffizienten (schattiert) und des feuchtenormierten Extinktionskoeffizienten (durchgezogene Linie), mit Ergebnissen von Aerosol-Filterproben nach der fotometrischen Methode von Hänel (1994) (Punkte). Für die Feuchtenormierung ist das 'Urban' Modell nach Hänel (1984) zugrundegelegt worden. Dargestellt sind Halbstundenmittelwerte des Aerosol-Extinktionskoeffizienten der urbanen Grundsicht in Leipzig vom Zeitraum 9. - 29. März 1991, die aus den Minutenwerten der Aufzeichnung zusammengefaßt sind.

Abb. 3 zeigt den Verlauf der Monatsmittelwerte des feuchtenormierten Extinktionskoeffizienten  $\sigma_A$  zusammen mit Monatsmittelwerten der Schwebstaubkonzentration  $c_A$ . Beide Größen sind miteinander korreliert und zeigen trotz des saisonalen Ganges einen deutlichen Abnahmetrend mit der Zeit, der bis 1994 anhält. Als Vergleichswerte für andere urbane Gebiete, sind die Werte von Berlin-Dahlem angegeben, die noch unter dem 1994 erreichten Niveau liegen. Insgesamt haben sich die atmosphärische Trübung in Form des feuchtenormierten Extinktionskoeffizienten  $\sigma_A$  und die Schwebstaubkonzentration  $c_A$  seit der politischen Wende 1990 in der Leipziger Stadtgrundsicht deutlich verringert (Abnahme um ca. 60 %).

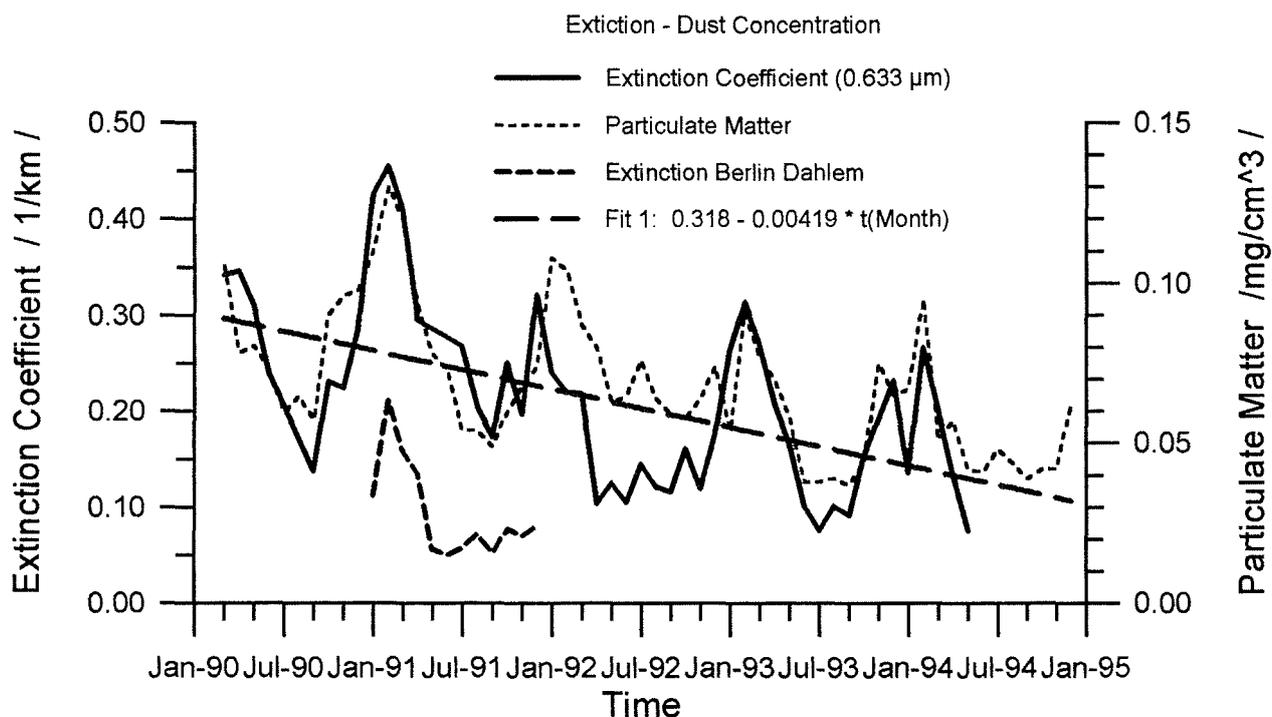


Abb.: 3

Zeitlicher Verlauf des feuchtenormierten Extinktionskoeffizienten für die LASER-Wellenlänge von 0.633  $\mu\text{m}$  (Monatsmittelwerte) (dicke Linie) und der Schwebstaubkonzentration (dünne Linie) im Zeitraum 1991-1994. Als Vergleichsbasis sind Extinktionskoeffizienten von Berlin-Dahlem angegeben.

Betrachtet man die Abnahmen beider Größen genauer zeigt sich ein leicht unterschiedlicher Abnahmetrend, der offensichtlich bei der Extinktion etwas stärker zu sein scheint als bei der Schwebstaubkonzentration. Führt man das Verhältnis beider Größen als spezifische Extinktion ein

$$\rho_A = \sigma_A / c_A \quad [\text{m}^2/\text{g}],$$

so zeigt sich eine Abnahme von 1991 bis 1995.

Jahr	$\rho_A$ [m <sup>2</sup> /g]
1991	3.33
1992	3.50
1993	2.37
1994	2.81
1995	2.42

Diese Tendenz ist Ausdruck einer veränderten Zusammensetzung des Aerosols in der atmosphärischen Grundschicht.

Aus den columnaren spektralen optischen Dicken der Spektralradiometermessungen und den invertierten Größenverteilungen zeigt sich eine Abnahme von Partikeln der coarse particle mode ( $r > 1 \mu\text{m}$ ) und damit eine relative Zunahme feinerer Teilchen ( $r < 0.15 \mu\text{m}$ ), die weniger optisch wirksam sind und damit zu einer Verringerung der spezifischen Extinktion führen.

### 3.2. Untersuchungen zur spektralen Extinktion in der urbanen Grundschicht

Da mit der LASER-Transmissionsstrecke nur monochromatische Information bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 0.633 \mu\text{m}$  erhalten worden ist, diese jedoch keine Information über das Spektralverhalten der Extinktion und damit über das Verhältnis von kleinen und großen Teilchen in der Aerosolgrößenverteilung wurden ergänzend zu Extinktionsmessungen mit der LASER-Transmissionsstrecke zeitweilig an wolkenfreien Tagen spektrale Aerosol-Extinktionskoeffizienten  $\sigma_A(\lambda)$  aus vertikal versetzten Spektralradiometermessungen am Universitätshochhaus bestimmt

$$\sigma_A(\lambda) = (\delta_{A-1}(\lambda) - \delta_{A-2}(\lambda))/h.$$

$\delta_{A-1}(\lambda)$  und  $\delta_{A-2}(\lambda)$  sind die vertikal um die Höhendifferenz  $h$  versetzten Spektralradiometermessungen. Obwohl sich durch die Differenzbildung von zwei nicht sehr unterschiedlichen Ergebnissen ein größerer Fehler für die spektralen Extinktionskoeffizienten ergibt, erhält man für die Wellenlänge von  $0.633 \mu\text{m}$  eine gute Übereinstimmung mit den Extinktionskoeffizienten der LASER-Transmissionsstrecke. Beispiele für spektrale Extinktionskoeffizienten der urbanen Grundschicht von Leipzig enthält Abb. 4, bzw. STETTLER & VON HOYNINGEN-HUENE (1996). Auffällig dabei ist, daß die Spektren der Morgenmessungen z.T. signifikant größere Spektralabfälle ( $\alpha > 1.5$ ) im ANGSTÖM'schen Potenzansatz ( $\sigma_A(\lambda) = \sigma_A(\lambda=1.0 \mu\text{m}) * \lambda^{-\alpha}$ ) zur Parametrisierung des Spektralverhaltens aufweisen als die Messungen im weiteren Tagesverlauf ( $\alpha < 1.0$ ). Weiterhin sind die flacheren Spektralverläufe meist nicht mehr mit einem einfachen Potenzansatz parametrisierbar, was eine Transformation der mit Hilfe der LASER-Transmissionsstrecke erhaltenen Extinktionskoeffizienten zu anderen Wellenlängen erschwert.

Ebenfalls Inversionsrechnungen zur Bestimmung von Aerosolgrößenverteilungen aus den spektralen Extinktionsverläufen mit einem nichtlinearen zufallsgesteuerten Inversionsverfahren (vgl.

VON HOYNINGEN-HUENE & WENDISCH (1994)) zeigen, daß bei den Morgenmessungen erheblich mehr feine Teilchen mit Radien  $r \leq 0.1 \mu\text{m}$  vorhanden sind, als im Verlaufe des weiteren Tages, vgl. Abb. 5. Inwieweit hier Transportvorgänge die Teilchen aus der untersuchten ca. 100 m dicken unteren urbanen Grundschicht entfernen oder ob die kleinen Teilchen mit Radien  $r \leq 0.2 \mu\text{m}$  durch Abtrocknen und damit verbundener Größenverkleinerung nur den optisch wirksamen Größenbereich verlassen, konnte mit dieser Herangehensweise nicht geklärt werden. Jedoch zeigen die Untersuchungen, daß man nicht von einem starren Aerosolmodell für die urbane Grundschicht ausgehen kann und Änderungen in der spezifischen Extinktion sowohl mit Änderungen in der Aerosolgrößenverteilung als auch in der Zusammensetzung des Aerosol verbunden sein können.

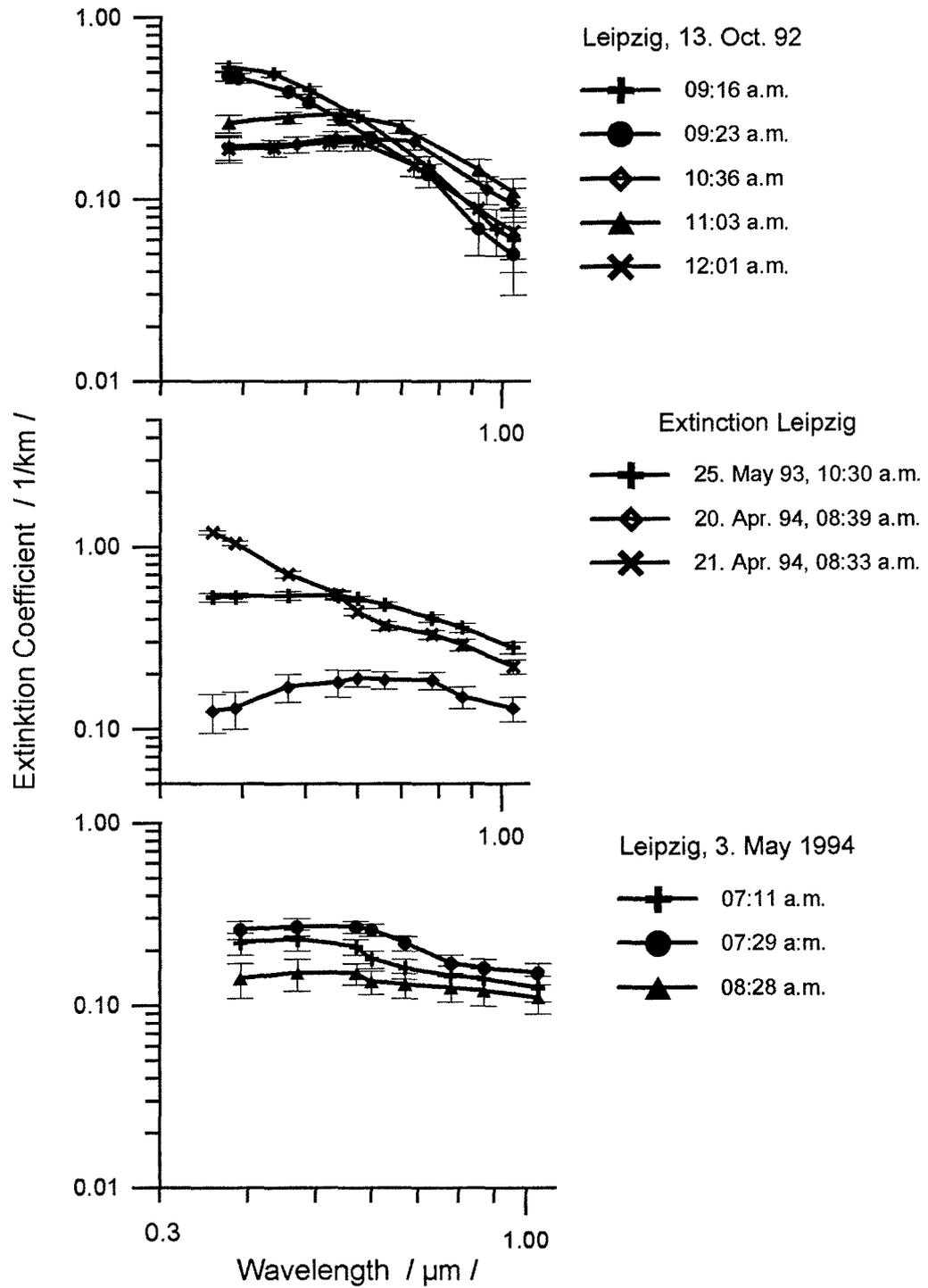


Abb.: 4  
 Spektrale Aerosol-Extinktionskoeffizienten der urbanen Grundsicht aus vertikal versetzten (100 m) Spektralradiometermessungen in Leipzig.

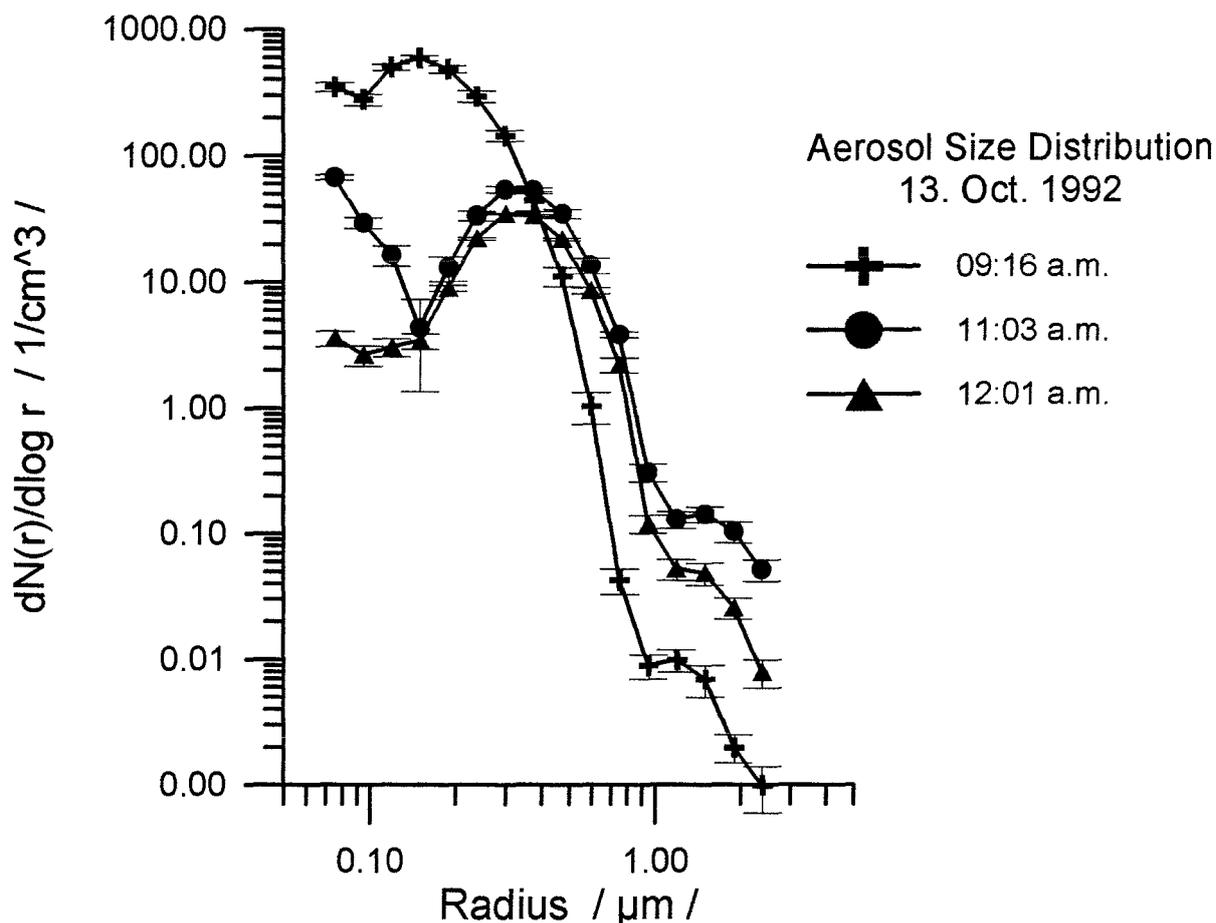


Abb.: 5

Invertierte Aerosolgrößenverteilungen zu den spektralen Extinktionsverläufen vom 13. Oktober in Leipzig.

### 3.3. Trübungsparameterbestimmung aus columnaren Messungen der spektralen optischen Dicke

In der Regel sind die Spektralradiometer zur Bestimmung der spektralen optischen Dicke  $\delta(\lambda)$  und der Himmelslichtstrahldichte  $L_H(\phi, h_0)$  im Almukantar (Sonnenhorizontalkreis) durchgeführt worden, die für die Untersuchungen mit dem gekoppelten Inversions- und Strahlungstransferprogramms CIRATRA benötigt werden. Die optische Dicke des Aerosols wurde zunächst dazu verwendet, ihre Änderung mit der Zeit während des SANA-Zeitraums darzustellen. Das Hauptproblem dabei bestand darin, die Änderungen in der Troposphäre von denen in der Stratosphäre zu trennen, da mit dem Ausbruch des Pinatubo ab Herbst 1991 in den Leipziger Messungen ein erheblicher Beitrag zur optischen Dicke durch das stratosphärische Aerosol hinzukam. Im folgenden soll kurz die Verfahrensweise bei der Bestimmung der spektralen

optischen Dicke des Aerosols und deren Separierung in troposphärischen und stratosphärischen Anteil vorgestellt werden.

Für die Bestimmung der spektralen optischen Dicke werden Messungen der spektralen direkten Sonnenstrahlung  $L(\lambda)$  verwendet. Die optischen Dicke  $\delta(\lambda)$  wird unter Zugrundelegung des Lambert-Bouguer'schen Gesetzes erhalten

$$\delta(\lambda) = 1 / M * \ln( L_0(\lambda) / L(\lambda) ).$$

Dabei ist  $M$  die relativ durchstrahlte Luftmasse der Atmosphäre, die sich nach KASTEN & YOUNG (1989) berechnet,  $L_0(\lambda)$  ist die extraterrestrische spektrale Strahlung der Sonne, auf die jedes eingesetzte Gerät zu kalibrieren ist. Dazu sind in regelmäßigen Abständen Kalibrierungsmeßkampagnen auf der Zugspitze durchgeführt worden, bei denen mit Hilfe einer modifizierten Langley-Plot-Methode  $L_0(\lambda)$  als gerätespezifisches Signal (Kanalempfindlichkeit, Filtertransmission) ermittelt wurde.

Den Aerosolanteil an der spektralen optischen Dicke erhält man durch Abzug der Rayleighstreuung -  $\delta_R(\lambda)$ , der Absorption von Ozon -  $\delta_{O_3}(\lambda)$ , Wasserdampf -  $\delta_{H_2O}(\lambda)$  und z.T. des  $NO_2$  -  $\delta_{NO_2}(\lambda)$

$$\delta_A(\lambda) = \delta(\lambda) - \delta_R(\lambda) - \delta_{O_3}(\lambda) - \delta_{H_2O}(\lambda) - \delta_{NO_2}(\lambda).$$

Die optischen Dicken der Spurengasanteile konnten bei der Vielzahl der gemessenen Spektralkanäle (90 im  $\lambda$ -Bereich von 0.35 - 1.1  $\mu m$ ) direkt aus den Spektralradiometermessungen in den jeweiligen Bandenbereichen ermittelt werden. So ergab z.B. ein Vergleich mit Ozondaten des DWD, daß der Fehler der abgeleiteten optischen Dicke aus den Spektralradiometermessungen nicht größer als 15 % betrug.

Diese columnare optische Dicke des Aerosols war während des SANA-Zeitraums in ihren troposphärischen und stratosphärischen Anteil aufzuspalten. Dafür standen 2 Wege zur Verfügung:

1. Verwendung der Zugspitzmessungen zur Bestimmung des Anteils der oberen Troposphäre und der Stratosphäre und Abzug dieses Beitrag zur spektralen optischen Dicke und
2. Verwendung des mittleren Spektralverhaltens von kontinentalen Luftmassentypen für Leipzig, das vor dem Ausbruch des Pinatubo gewonnen wurde.

Beide Wege wurden hier angewandt.

Für die Korrektur der Trübungsparameter  $\alpha$  und  $\beta$  nach ANGSTRÖM ( $\delta_A(\lambda) = \beta * \lambda^{-\alpha}$ ) wurde folgender Ansatz verwendet:

$$\delta_A(\lambda) = \beta_{Trop} * \lambda^{-\alpha_{Trop}} + \beta_{Pin} * \lambda^{-\alpha_{Pin}}$$

Dabei konnte davon ausgegangen werden, daß im langjährigen Mittel die Troposphäre in Leipzig bei kontinentalen Luftmassen ein Spektralabfall  $\alpha_{Trop} = 1.1$  besaß. Von den Zugspitzmessungen konnte ein Spektralabfall für die obere Troposphäre und Stratosphäre  $\alpha_{Pin} = 0.0$  abgeschätzt werden. Unter diesen Annahmen war aus den spektralen Daten der optischen Dicke des Aerosols eine Separierung der Anteile aus den Messungen in Leipzig möglich.

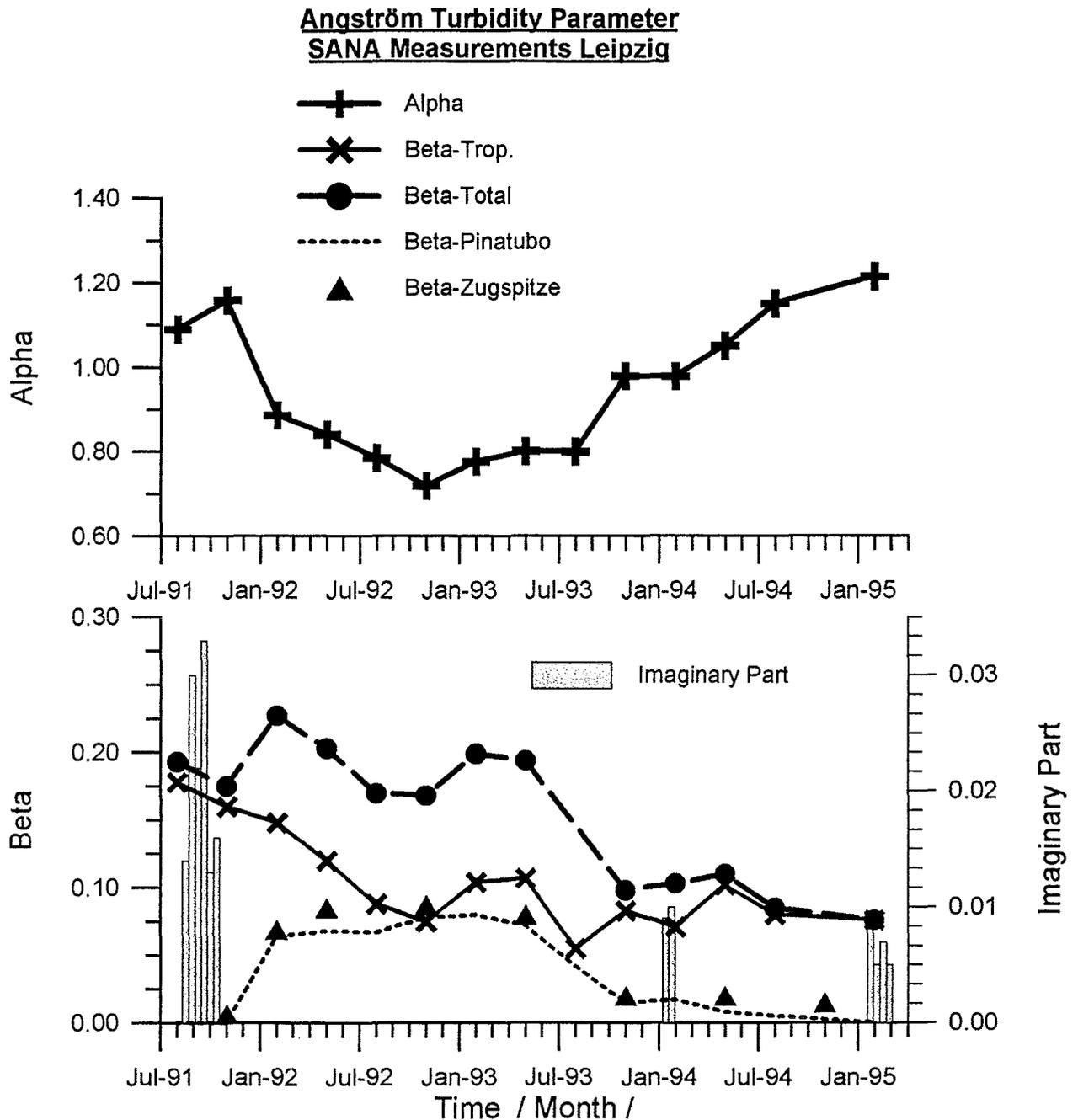


Fig. 6:  
Time series of the ANGSTRÖM turbidity parameter:  $\delta_A(\lambda) = \beta * \lambda^{-\alpha}$   
of the spectral aerosol optical thicknesses  $\delta_A(\lambda)$  at the site Leipzig, 1991 - 1995:  
 $\alpha$  - Spectral slope of the aerosol optical thickness (total)  
 $\beta$  - ANGSTRÖM turbidity coefficients, different for:  
- total column,  
- stratospheric volcanic aerosol (Pinatubo),  
- tropospheric part, mainly determined by the boundary layer

Der zeitliche Verlauf der aus den spektralen optischen Dicken des Aerosols abgeleiteten Trübungsparameter der verschiedenen Anteile ist in Abb. 6 dargestellt.

Im oberen Teil ist der zeitliche Verlauf des Spektralabfalls zu sehen. Bemerkenswert ist, daß der gemessene Spektralabfall nach Abklingen des Pinatubo-Einflusses deutlich über den Werte liegt,

die vor dem Ausbruch des Pinatubo in Leipzig erhalten wurden. Als Ursache kommt die relative Zunahme von Teilchen im Größenbereich von  $r = 0.1 \mu\text{m}$  in Frage, die im wesentlichen durch die Senkung des coarse Partikelanteils hervorgerufen sein wird.

Im unteren Teil der Abb. 6 ist der zeitliche Verlauf der Trübungsparameter  $\beta$  insgesamt und für die unterschiedlichen Anteile dargestellt. Dabei ist die Abnahme der troposphärischen Trübung während des SANA-Zeitraums deutlich. Der Trübungskoeffizient  $\beta_{\text{Trop}}$  verringert sich bis Mitte 1993 auf ca. 50 % des ursprünglichen Wertes, um dann etwa konstant zu bleiben.

Regionale Unterschiede zwischen verschiedenen Meßpunkten während des SANA Zeitraums sind bei VON HOYNINGEN-HUENE et al. (1996) dargestellt. Deutlich zeigt sich ein Trübungsunterschied zwischen geringeren Trübungen an den Meßstellen Zingst, Lindenberg (vom DWD) und Melpitz und den hohen Trübungen in Leipzig, die sich im Verlaufe der Zeit entsprechend verringert haben. Nennswerte spektrale Unterschiede konnten im Rahmen der Genauigkeit der Messungen nicht festgestellt werden.

### **3.4. Bestimmung columnarer klimarelevanter Aerosolparameter mit CIRATRA**

#### **3.4.1. Grundzüge der CIRATRA Methodik**

Für die Bestimmung der columnaren klimarelevanten Aerosolparameter wurde das gekoppelte Inversions-Strahlungstransferprogramm CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer), vgl. VON HOYNINGEN-HUENE & WENDISCH (1994), WENDISCH & VON HOYNINGEN-HUENE (1994) verwendet. Eine Übersicht über die Hauptschritte von CIRATRA sind in Abb. 7 dargestellt. Die wesentlichen Schwerpunkte des Herangehens sind:

1. Aus den spektralen optischen Dicken des Aerosols und der Strahldichtevertelung in der Aureole wird unter Vorgabe eines Brechungsindexes eine temporäre Aerosolgrößenverteilung invertiert. Dazu wird eine nichtlineare iterative zufallsgesteuerte Inversionsprozedur verwendet, die eine 'Histogrammverteilung' ohne Vorgabe eines bestimmten Verteilungstyps aus den Eingabedaten bestimmt.
2. Mit dieser temporären Größenverteilung wird die Aerosoleinfachstreuungsfunktion berechnet. Sie kann einerseits unter Annahme kugelförmiger Teilchen mit Hilfe der Mie-Theorie oder wahlweise mit der semiempirischen Streutheorie für nichtsphärische Teilchen von POLLACK & CUZZI (1980) erhalten werden. Der Aerosoleinfachstreuung wird im Anschluß noch die Rayleighstreuung der Luftmoleküle hinzugefügt.
3. Mit der Einfachstreuungsfunktion und der gemessenen optischen Dicke wird unter Annahme einer Bodenbedo die Himmelslichstrahldichte im Almkantar mit Hilfe des Strahlungstransfercodes von NAKAJIMA & TANAKA (1988) berechnet. Dabei wird der IMS-code verwendet (Intensity Corrected Multiple Scattering).

# CIRATRA

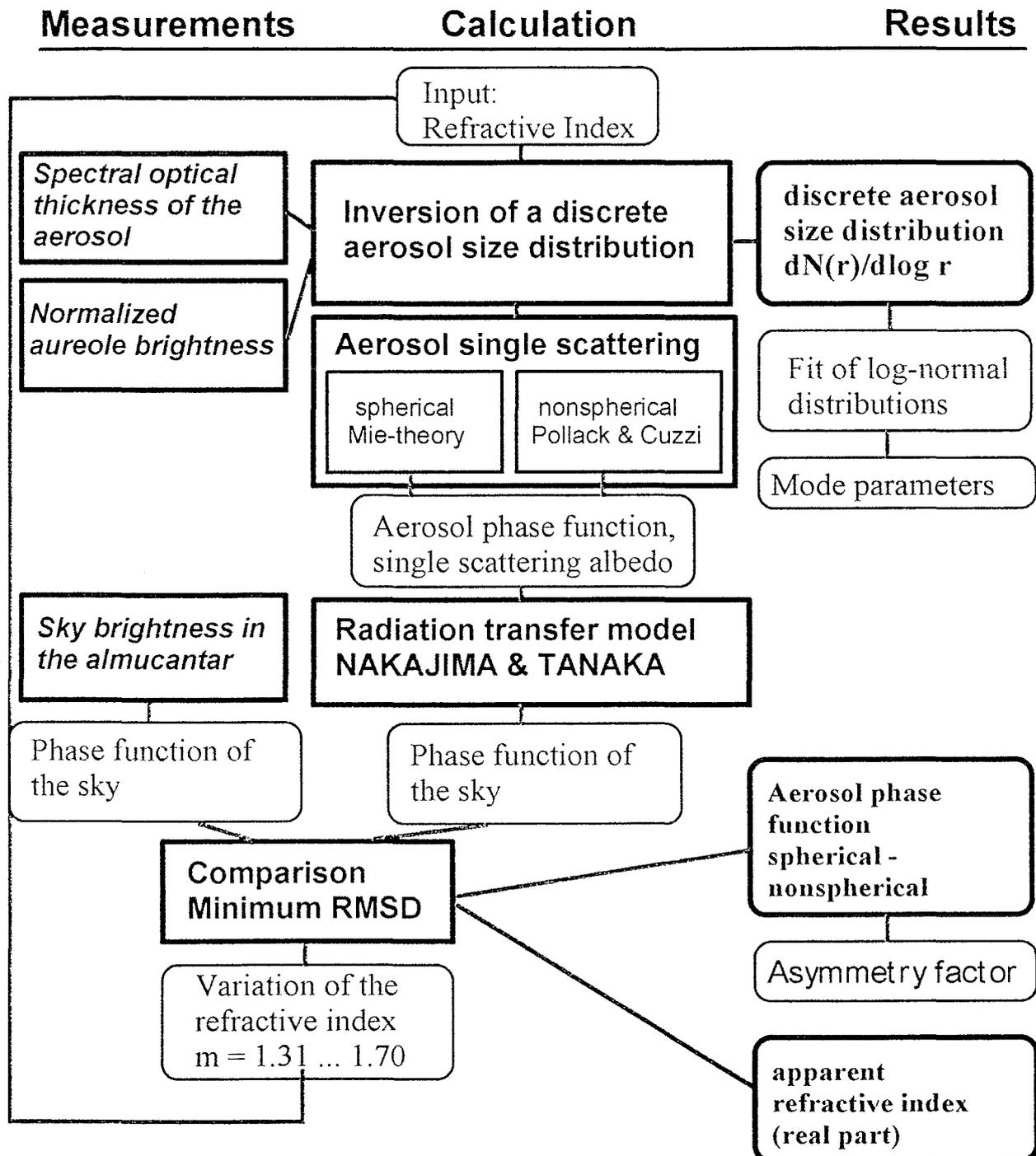


Abb.: 7  
Schematischer Überblick über die Teilschritte in der CIRATRA Prozedur.  
CIRATRA = Coupled Inversion Radiation Transfer.

4. Die berechnete, wie auch die gemessenen Himmelslichtverteilung im Almukantar wird im Sinne eine Phasenfunktion auf das Integral über den gesamten Streuwinkelbereich normiert (Norm = 1). Damit werden sowohl Kalibrierungsfehler der Messungen als auch ungenaue Vorgaben der extraterrestrischen Strahlungswerte im Modell eliminiert und die Vergleichbarkeit von gemessener und berechneter Strahldichtevertelung im Almukantar hergestellt.

5. Vergleich der berechneten und gemessenen normierten Strahldichtevertelungen, indem der RMSD zwischen beiden Ergebnissen bestimmt wird.

6. Der ganze Zyklus 1. - 5. wird mit verändertem vorgegebenem Brechungsindex wiederholt und das Minimum des RMSD gesucht. Das Minimum des RMSD gibt deutlich den vorherrschenden columnaren Brechungsindex an. Das ist der Fall der besten Anpassung der erhaltenen Ergebnisse an die experimentell gewonnenen Daten. Die so erhaltenen Ergebnisse stellen die columnaren klimarelevanten Aerosolparameter dar, die in der Lage sind, das gemessene Strahlungsfeld zu beschreiben:

- columnarer Brechungsindex,
- columnare Aerosolgrößenverteilung für den erhaltenen Brechungsindex.
- columnare Einfachstreuungsfunktion des atmosphärischen Aerosols.

Weitere Parameter, wie Modenparameter von logarithmischen Normalverteilungen oder Asymmetrieparameter ergeben sich durch Anpassungen an die vorstehend aufgeführten Ergebnisse.

### 3.4.2. Ergebnisse

Die vorstehend beschriebene Methodik ist auf die spektralen optischen Dicken und die Himmelslichtstrahldichtemessungen des SANA Projekts von Leipzig und Melpitz angewandt worden. Wesentliche Ergebnisse sind im folgenden dargestellt:

#### 1. Teilchenform

Für die meisten Messungen, die in Leipzig gewonnen wurden, konnte zur Schließung zwischen den gemessenen Strahlungskomponenten die Mie-Theorie zur Beschreibung der Streueigenschaften des Aerosols verwendet werden. Das Ergebnis zeigt, daß im Mittel das dort vorhandenen Aerosol als kugelförmig anzusehen ist. Nur bei advektiv harangeführten maritimen Luftmassen konnte mit Hilfe der Mie-Theorie keine brauchbare Approximation der berechneten Strahlungsgrößen erreicht werden.

#### 2. Brechungsindex

Die ermittelten Realteile der Brechungsindices, des atmosphärischen Aerosols zeigen eine deutliche Abhängigkeit zur relativen Luftfeuchte und werden weiterhin vom vorherrschenden Luftmassentyp beeinflusst. Extrapolationen zum Trockenzustand (Luftfeuchte  $f = 0$ ) ergeben Werte, wie sie aus den Aerosolmodellen 'average continental' oder 'urban' bekannt sind, Abb. 8.

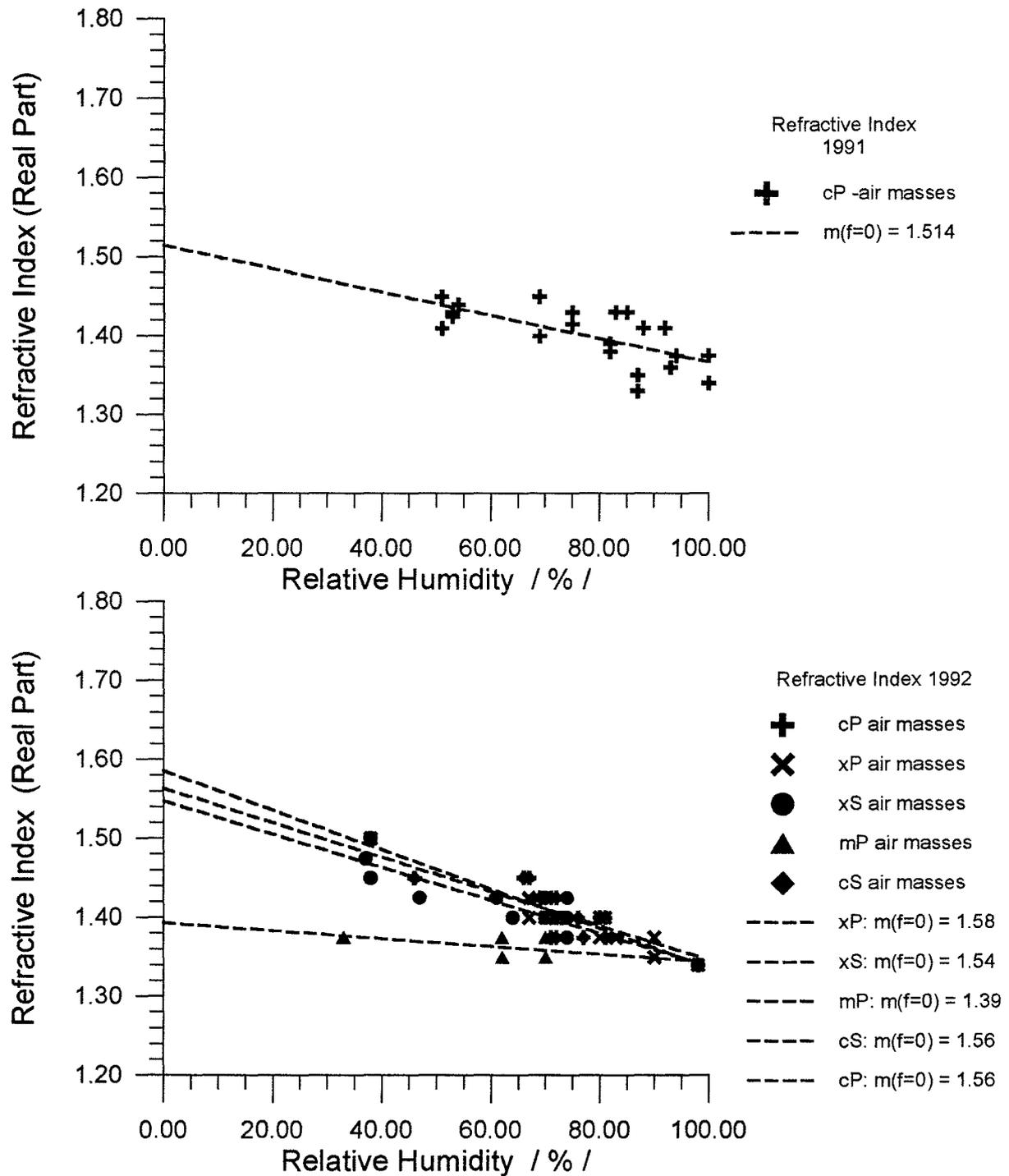


Abb.: 8

Realteile des mit der CIRATRA Prozedur bestimmten Brechungsindices, klassifiziert nach verschiedenen vorherrschenden Luftmassensituationen: cP - kontinentale Polarluft, xP - gealterte Polarluft, cS - kontinentale Subtropikluft, xS - gealterte Subtropikluft, mP - maritime Polarluft. Für die Extrapolation zur relativen Feuchte von  $f=0$  wurde ein linearer Fit verwendet. Die Werte  $m(f=0)$  geben die mit der linearen Beziehung ermittelten Brechungsindices des Trockenzustands an.

Es zeigt sich aber, daß der reale Brechungsindex, der 'in-situ' für das Aerosol in seiner thermodynamischen Umgebung angesetzt werden muß, durch den Feuchteeinfluß erheblich niedriger ist,

Ebenso zeigt sich ein deutliche Unterschied im Feuchteverhalten von verschiedenen Aerosoltypen. Für kontinentale und gealterte Luftmassentypen, ergibt sich der Realteil des Brechungsindex mit abnehmender Feuchte als  $m_{\text{Real}} = 1.51 - 1.52$  (bei  $f = 0$ ), die realen aus den Messungen abgeleiteten Mittelwerte beim normalen Feuchtezustand der Atmosphäre liegen bei  $m_{\text{Real}} = 1.40 - 1.45$  je nach Feuchtezustand. Wenn man davon ausgeht, daß (mit Ausnahme der Präsenz von stratosphärischen vulkanischen Impakten) ca 80 % des Beitrags der columnaren optischen Parameter aus der atmosphärischen Grundschicht kommt, so ist der erhaltene Brechungsindex im wesentlichen als Charakteristikum für das Grundschichtaerosol anzusehen.

Für advektiv herangeführte maritime Luftmassen liegen die erhaltenen Werte unter  $m_{\text{Real}} < 1.40$  und zeigen auch keine ausgeprägte Feuchteabhängigkeit.

Der Imaginärteil des Brechungsindex konnte mit dem einfachen CIRATRA Verfahren noch nicht ermittelt werden, da die Einfachstreueralbedo bei der verwendeten Normierung der Strahldichtevertelungen des Himmelslichts im Almkantar aus den Streutermen herausgekürzt wird. Um diesen Informationsverlust wieder aufzuheben, ist eine weitere unabhängige experimentelle Strahlungskomponente erforderlich, die diesen Einflußfaktor noch enthält. Erste Versuche mit der Einbeziehung von gemessenen abwärtsgerichteten Breitband-Strahlungsflüssen (Globalstrahlung) sind für die Intensivmeßkampagne 1991 in Melpitz erfolgreich durchgeführt worden, vgl. VON HOYNINGEN-HUENE et al. (1996). Die Bearbeitung der Leipziger Daten mit der dort dargestellten Methode ist z.Z. noch in Bearbeitung. Erste Ergebnisse, die den Unterschied in den Imaginärteilen zwischen 1991 und 1994/1995 zeigen sind in Abb. 6 enthalten. Für diese Untersuchungen konnten nur Datensätze herangezogen werden, in denen der Einfluß des stratosphärischen Vulkanaerosols weitgehend abgeklungen war, so daß er weder in den optischen Dicken noch in den Strahlungsflußdichten bemerkbar war. Die vorliegenden ersten Ergebnisse zeigen für 1994/1995 ( $k = 0.008$ ) eine Reduzierung des Imaginärteils auf ca. 30 % des Werts, der 1991 ( $k = 0.022$ ) ermittelt worden war.

### 3.. Aerosolgrößenverteilung

Um die wesentlichen Unterschiede in den Aerosolgrößenverteilungen während des SANA-Zeitraums zu erhalten, sind nur die Ergebnisse von Messungen verwendet worden, die bei kontinentalen und gealterten Luftmassentypen erhalten wurden. Der Zeitraum 1992 wurde wegen des vorherrschenden Einflusses des Pinatubo-aerosols in den columnaren Eingangsdaten ausgeklammert. Abb. 9 zeigt die mittleren columnaren Größenverteilungen für kontinentale und gealterte Luftmassentypen für die Messungen von 1990/1991, 1993 und 1994. Man erkennt die Veränderung in den Aerosolgrößenverteilungen, vor allem im Radienbereich von  $0.2 - 0.7 \mu\text{m}$  durch Abnahme der Teilchenzahlen in der Atmosphärensäule. In den Ergebnissen von 1993 tritt deutlich noch der Einfluß des Pinatubo-Aerosols im Radienbereich von  $0.6 - 1.0 \mu\text{m}$ , der dann in den Daten von 1994 weitgehend fehlt.

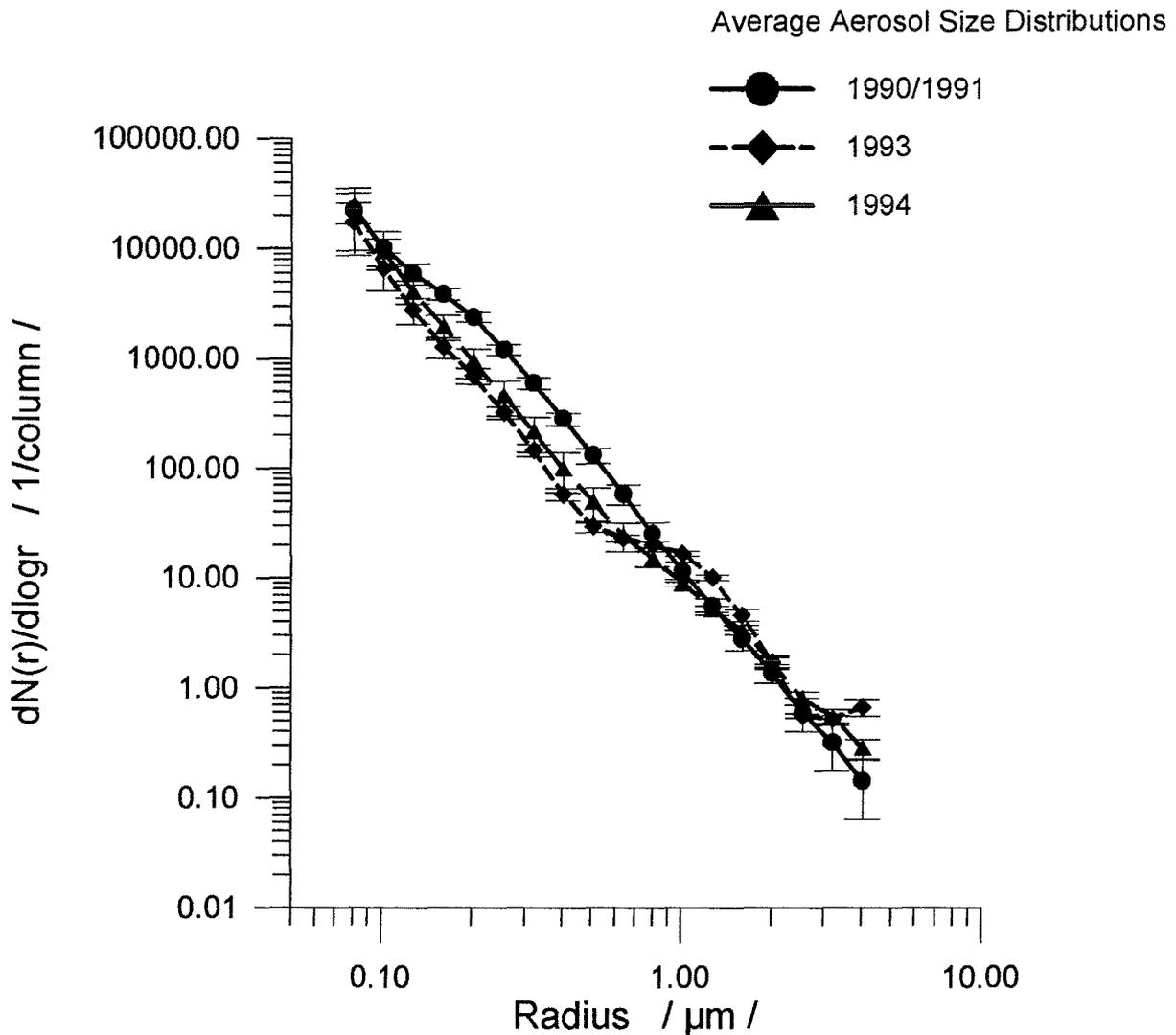


Abb.: 9

Mittlere columnare Aerosolgrößenverteilung für kontinentale Luftmassentypen in Leipzig für die Zeitbereiche 1990/1991, 1993 und 1994. Im Jahr 1993 ist noch deutlich der Einfluß des stratosphärischen Pinarubo-Aerosols erkennbar.

Vergleicht man die Ergebnisse von 1990/91 und 1994, spiegeln sie die wesentlichen Ergebnisse der Strukturveränderungen für die Aerosolgrößenverteilung wider. Die hauptsächliche Abnahme hat im Teilchengrößenbereich von 0.2 - 1.0  $\mu m$  stattgefunden. Der Teilchenbereich von  $r < 0.2$  zeigt keine wesentlichen Abnahmeerscheinungen, so daß sich daraus die Zunahme des Spektralabfalls in der spektralen optischen Dicke für die Jahre 1994 und 1995 erklärt (relative Zunahme kleinerer Teilchen).

Die Modenparameter für die Anpassung von logarithmischen Normalverteilungen an die invertierten Aerosolgrößenverteilungen spiegeln im wesentlichen das gezeigte Ergebnis wider. Man erhält in den meisten Fällen eine Anpassung von 4 Moden.

Mittlere Modenparameter für Aerosolgrößenverteilungen in der Troposphäre über Leipzig.

Zeit	Mode 1			Mode 2		
	Modenradius $\mu\text{m}$	Modenbreite	Partikelanzahl $\text{cm}^{-3}$	Modenradius $\mu\text{m}$	Modenbreite	Partikelanzahl $\text{cm}^{-3}$
1990/91	0.060	1.77	9600	0.178	1.61	651
1993/94	0.070	1.58	17800	0.176	1.55	493

Zeit	Mode 3			Mode 4		
	Modenradius $\mu\text{m}$	Modenbreite	Partikelanzahl $\text{cm}^{-3}$	Modenradius $\mu\text{m}$	Modenbreite	Partikelanzahl $\text{cm}^{-3}$
1990/91	0.434	1.64	130	1.26	1.44	3.85
1993/94	0.647	1.52	59	1.22	1.35	6.85

Die Modenparameter der Einzelmessungen zeigen jedoch eine große Variabilität. Die Hauptunterschiede sind in den Moden 2 und 3 zu erkennen.

#### 4. Phasenfunktion

Die Phasenfunktion für das Leipziger Aerosol während des SANA-Zeitraums läßt sich in den Fällen mit Hilfe der Mie-Theorie aus den Aerosolgrößenverteilungen berechnen. Vergleicht man die Phasenfunktionen für kontinentale und gealterte Luftmassen von 1991 und 1994 so zeigen sich keine signifikanten Unterschiede. Die Unterschiede, die durch Luftmassenvariabilität auftreten sind erheblich größer als die zwischen 1991 und 1994. Die daraus resultierenden mittleren Asymmetrieparameter des Aerosols sind:

$$1991: \quad g = 0.658 \pm 0.02$$

$$1994: \quad g = 0.666 \pm 0.02.$$

### 3.5 Abschätzung von kurzwelligen Strahlungsflüssen

Zur Abschätzung von Änderungen in den kurzwelligen Strahlungsflüssen wurden die erhaltenen Aerosolparameter in einem spektralen Strahlungsbilanzprogramm auf der Basis des Strahlungscode von NAKAJIMA & TANAKA verwendet, um die abwärts- und aufwärtsgerichteten zu berechnen. Das Grundschemata des Strahlungsflußprogramms zeigt Abb. 10.

Für eine erste Abschätzung der aerosolbedingten Änderung der Strahlungsbilanz durch die im SANA-Zeitraum abgelaufenen Änderung in den Aerosolparametern wurden Daten von Herbst 1991 und Herbst 1993 verwendet. Das Jahr 1992 wurde wegen des Pinatubo-Einflusses in der optischen Dicke ausgeklammert.

Der Hauptunterschied der optischen Eingangsparameter resultiert zum gegenwärtigen Kenntnisstand aus der Verringerung der optischen Dicke, da wir keinen signifikanten Unterschied in den Phasenfunktionen feststellen konnten. Ein Einfluß der Absorption konnte noch nicht untersucht werden, da die Untersuchungen für die Single Scattering Albedo noch nicht abgeschlossen sind.

Damit ergab sich für die gewählten Zeitpunkte 1991 und 1991 ein Unterschied in der Strahlungsbilanz von ca.  $\Delta B = +8 \text{ W/m}^2$  in der kurzwelligen Strahlungsbilanz. Ebenso konnte eine Änderung im abwärts gerichteten Strahlungsfluß erhalten werden ebenfalls als ca.  $F_G = +8 \text{ W/m}^2$  erhalten. Damit hat durch die Verringerung der Trübung von 1991 bis 1993 eine Zunahme der kurzwelligen Strahlungsbilanz und des abwärtsgerichteten Strahlungsflusses stattgefunden. Das anthropogene Strahlungsforcing durch die Belastungen der Braunkohleverbrennung während der DDR-Zeit kann daher für die Region um Leipzig mit ca.  $8 \text{ W/m}^2$  abgeschätzt werden.

Zur Überprüfung der erhaltenen Ergebnisse wurden die Globalstrahlungsmessungen herangezogen. Die Daten aller wolkenfreien Tagesabschnitte wurden für die Vergleichbarkeit auf mittlere globale Einstrahlungsbedingungen umgerechnet. Damit wird der Einfluß unterschiedlicher Einstrahlungsbedingungen an verschiedenen Tage und Tageszeiten herauskorrigiert. Aus diesen korrigierten Größen wurden Monatsmittelwerte für die Daten von 1990/91 und 1993/94 berechnet. Es zeigt sich, daß der Hauptunterschied in den normierten abwärtsgerichteten Strahlungsflüssen in den Wintermonaten existiert, z.Z. sogar über  $+10 \text{ W/m}^2$ , während der Unterschied in den Sommermonaten weitgehend verschwindet. Abb. 11 zeigt die Resultate der korrigierten abwärtsgerichteten Strahlungsflüsse und die berechneten Differenzen. Das Kreuz markiert das Ergebnis der Strahlungsflußberechnungen aus den erhaltenen Aerosolparametern.

Damit zeigen Abschätzungen aus den Strahlungsflußmessungen und den Strahlungsflußberechnungen aus den gemessenen Aerosolparameter vergleichbare Resultate.

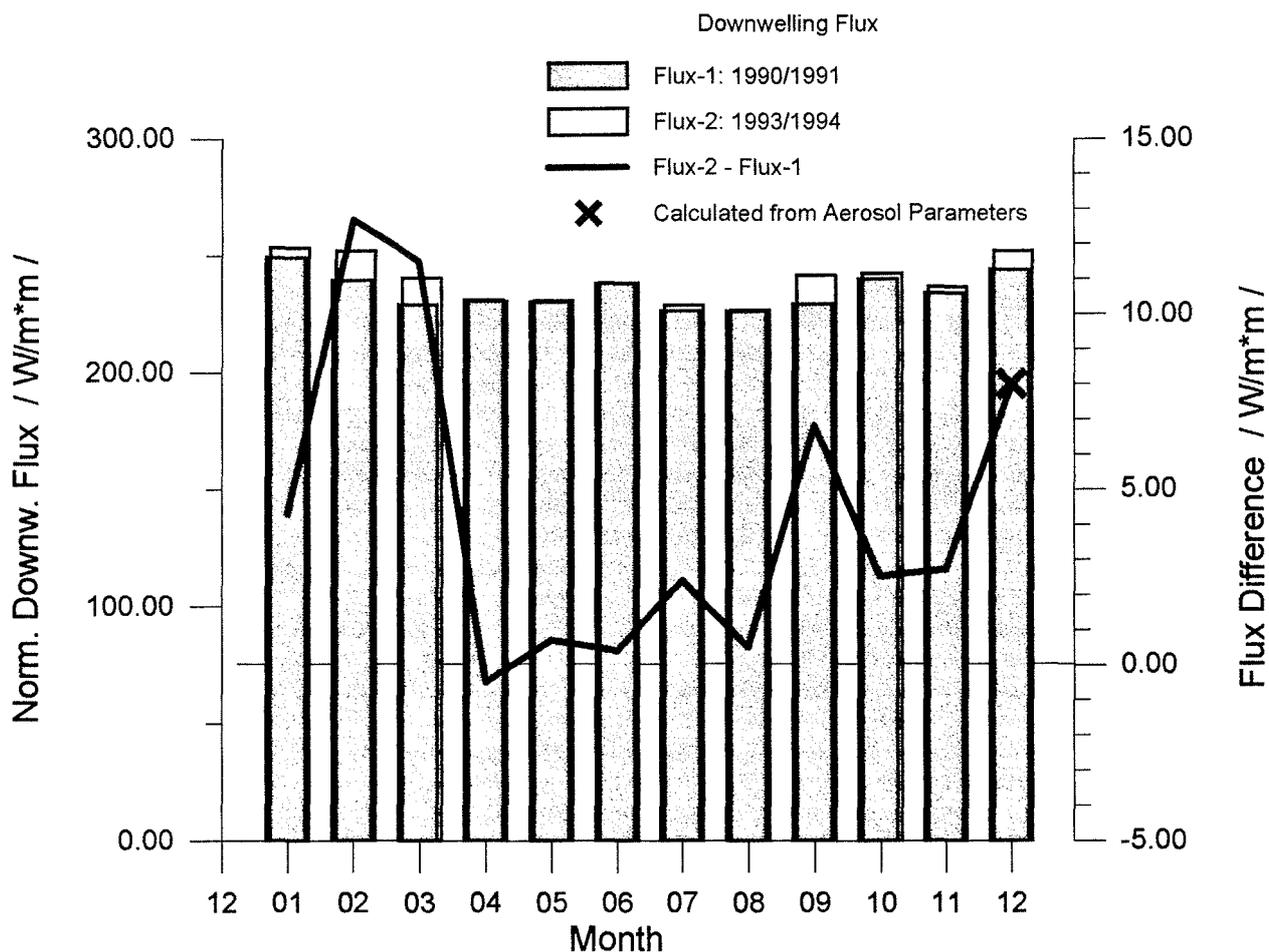


Abb.: 11

Vergleich der Monatsmittelwerte des abwärtsgerichteten kurzwelligen Strahlungsflusses (bezogen auf mittlere globale Einstrahlung) für wolkenlose Stundenabschnitte aus den Globalstrahlungsmessungen von Leipzig der Zeiträume 1990/91 und 1993/94. Die Differenz zwischen den Werten von 1993/94 und 1990/91 (dicke Linie) zeigt vor allem in den Wintermonaten eine deutliche Zunahme (von bis zu  $12 \text{ W/m}^2$ ), die im Jahresmittel  $3.9 \text{ W/m}^2$  ausmacht. Das Kreuz markiert die Flußänderung, die sich bei der Zugrundelegung der über die Inversionsmethoden bestimmten Aerosolparameter ergibt ( $8 \text{ W/m}^2$ ).

#### 4. Zusammenfassung

Das vorgestellte Teilprojekt erbrachte folgende Ergebnisse und neue Erkenntnisse:

Die atmosphärische Trübung und die Schwebstaubkonzentration haben sich seit der politischen Wende 1990 in der Leipziger Stadtgrundsicht deutlich verringert (Abnahme um ca. 60 %).

Die stark luftmassenabhängige spektrale optische Dicke des Aerosols der Troposphäre über Leipzig hat sich ebenfalls verringert, was zur Veränderung der ab- und aufwärtsgerichteten Strahlungsflüsse geführt hat. Allein die Abnahme der optischen Dicke des Aerosols ergab eine Zunahme der kurzwelligen Strahlungsbilanz von  $8 \text{ W/m}^2$  im Zeitraum von 1991 bis 1993, was einem Strahlungsforcing durch anthropogenes Aerosol der Stadtgrundsicht in der betreffenden Region entspricht.

Die Zusammensetzung des troposphärischen Aerosols veränderte sich in einer Weise, die zu einer starken Zunahme des relativen Anteils kleiner Partikel ( $r < 0.15 \mu\text{m}$ ) führte. Diese Veränderung sollte auch der entscheidende Grund für die Abnahme der spezifischen Extinktion in der Grundsicht von  $3.5 \text{ m}^2/\text{g}$  auf  $2.3 \text{ m}^2/\text{g}$  sein.

Die experimentelle Untersuchung des Aerosol-Brechungsindex ergab keine signifikante Änderung von 1992 zu 1993/94, bestätigte aber dessen Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchtigkeit. Weiterhin konnte gezeigt werden, daß gealtertes Aerosol hydrophyler als frisches kontinentales Aerosol ist.

Für den Trübungszustand der Atmosphäre, inclusive der Grundsicht, sind meteorologische Ereignisse (Frontdurchgänge, Schichtung, vorherrschender Luftmassentyp) von vorrangiger Bedeutung.

## 5. Danksagung

An dieser Stelle sei dem Bundesministerium für Bildung und Forschung BMBF (früher BMFT) und dem Koordinator des Verbundprojekts SANA, Prof. W. Seiler für die Unterstützung vorliegender Forschungsarbeiten gedankt.

## 6. Literatur

Wendisch, M., und W. von Hoyningen-Huene (1992), Optically equivalent refractive index of atmospheric aerosol particles, *Beitr.Phys.Atmosph.*, Bd.65, 293-308

Stettler, M., und W. von Hoyningen-Huene (1993), Estimation of Pinatubo aerosol size distribution and its influence on spectral optical thickness measurements in Canada, *Beitr.Phys.Atmosph.*, Bd.66, 347-354

Uhlig, E.-M., und W. von Hoyningen-Huene (1993), Correlation of the atmospheric extinction coefficient with the concentration of particulate matter for measurements in a polluted urban area, *Atmospheric Research*, Bd.30, 181-195

von Hoyningen-Huene, W., und M.Wendisch (1994), Variability of aerosol optical parameters by advective processes, *Atmospheric Environment*, Bd.28, 923-933.

Stettler, M., und W.von Hoyningen-Huene (1994), Three years of aerosol extinction measurements with a He-Ne-laser in the urban boundary layer of Leipzig, Germany, Beitr.Phys.Atmosph., Bd.67, 169-180

Uhlig, E.-M., Stettler, M., und W. von Hoyningen-Huene (1994), Experimental studies on the variability of the extinction coefficient by different air masses, Atmospheric Environment, Bd.28, 811-814

Wendisch, M., und W.von Hoyningen-Huene (1994), Possibility of refractive index determination of atmospheric aerosol particles by ground-based solar extinction and scattering measurements. Atmospheric Environment, Bd.28, 785-792

von Hoyningen-Huene, W., Stettler, M., und M. Weller (1996), Determination of climate-relevant aerosol parameters in the vicinity of an industrial region in Eastern Germany, Meteorol. Zeitschrift NF Bd.5 (Nov.) in press

Stettler, M., und W.von Hoyningen-Huene (1996), On the relation between boundary layer and air mass aerosol at an urban location - case studies, Atmospheric Research Bd.40 1-18.

Hänel, G. (1984) Parametrization of the influence of relative humidity on optical properties. In: Aerosol and their climatic effects. Deepak Publ. Hampton, 117-123.

Hänel, G. (1976) The Properties of atmospheric aerosol particles as function of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with the surrounding moist air. Advances in Geophysics, Vol 19, 73-188.

Hänel, G. (1994) Optical Properties of atmospheric particles: complete parameter sets obtained through polar photometry and improved inversion technique. Applied Optics, Vol. 33, 30, 7187-7199.

Kasten, F., Young, A.T. (1989) Revised optical air mass tables and approximation formula. Applied Optics, Vol. 22, 4735-4738.

Pollack, J.B., Cuzzi, J.N. (1980) Scattering by nonspherical particles of size comparable to a wavelength: a semiempirical theory and its application to tropospheric aerosols. J. Atm. Sci., Vol 37, 868-881.

Nakajima, T., Tanaka, M. (1988) Algorithms for radiative intensity calculations in moderately thick atmospheres using a truncation approximation. J. Quant. Spectrosop. Radiat. Transfer, Vol 40, 51-69.