

Spektraler Extinktionsgang und Größenverteilung des Pinatubo-Aerosols

Wolfgang von Hoyningen-Huene, Peter Posse

Zusammenfassung:

Spektralradiometermessungen (spektrale optische Dicke und Himmelshelligkeitsfunktion) unter Hochgebirgsbedingungen (Zugspitze, 2965 m) wurden zur Bestimmung der klimarelevanten Aerosolparameter des stratosphärischen Vulkanaerosols (speziell des Pinatubo) verwendet. Die erhaltenen klimarelevanten Aerosolparameter aus den Meßkampagnen werden mit Angaben der Aerosolklimatologien verglichen und zur Abschätzung des kurzwelligen Strahlungsforcings durch das Pinatubo-Aerosol verwendet.

Summary:

Spectral radiometer measurements (spectral optical thickness and sky brightness function) under high mountain conditions (Zugspitze, 2965 m) have been used for the determination of climate-relevant aerosol parameters of the stratospheric volcanic aerosol (columnar size distribution, refractive index, phase function and asymmetry parameter - especially of the aerosol of the Pinatubo volcano eruption in 1991). The climate-relevant aerosol parameters of the measurement campaigns and their temporal change have been compared with data of the aerosol climatologies and have been used for the estimation of the short wave radiative forcing of the Pinatubo event.

1. Zielstellung

Die vorgestellten Ergebnisse sind Bestandteil des Ergebnisberichts zum BMBF Verbundprojekt 'Spurenstoffkreisläufe' und des darin geförderten Themas mit o.g. Bezeichnung.

Die wesentlichen Ziele des Teilprojekts waren:

- Messung des spektralen Verlaufs der optischen Dicke des vulkanischen Aerosols in der Stratosphäre (für den Ausbruch des Pinatubo) im Wellenlängenbereich von 0.35 - 1.1 μm mit einer spektralen Auflösung, die eine Ableitung der columnaren Aerosolgrößenverteilung mit den im CIRATRA-Ansatz enthaltenen Inversionsprogrammen ermöglicht.
- Durchführung von ergänzenden Messungen von Aureolen- und Himmelshelligkeitsstrahl-dichte im Almkantar (Sonnenhorizontal) zusammen mit den spektralen optischen Dicken, die die Grundlage für die Ermittlung der wesentlichen klimarelevanten optischen Aerosolparameter ermöglichen, die zur Abschätzung des kurzwelligen Strahlungsforcings durch das stratosphärische Aerosol, insbesondere des Beitrags des Pinatubo-Aerosols dienen.
- Bestimmung der wesentlichen klimarelevanten Aerosoleigenschaften für das Pinatubo-Aerosol

- a) in Form der optischen Eigenschaften (spektrale optische Dicke und Phasenfunktion mit Asymmetrieparametern im solaren Einstrahlungsbereich, die
 1. die Grundlage für die Abschätzung des kurzwelligen Strahlungsforcings sind und
 2. den Vergleich zwischen verschiedenen Spektralbereichen (unterschiedliche LIDAR-Wellenlängen) gestatten,
 - a) in Form von Angaben über die optisch relevante Struktur und Zusammensetzung des Aerosols (columnare Größenverteilung, Angaben zur Teilchenform und komplexer Brechungsindex), die sowohl für die Bestimmung reaktiver Oberflächen, effektiver Radien und Modellierungen der Strahlungseigenschaften Verwendung finden.
- Abschätzung des kurzwelligen Strahlungsforcings durch den Impact des starosphärischen Aerosols, insbesondere des Einflusses des vulkanischen Pinatubo-Aerosols.

2. Arbeitsbericht

Entsprechend der Antragstellung wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

- Durchführung von zielgerichteten Meßkampagnen auf der Zugspitze, in denen Spektralradiometer zur Bestimmung der direkten Sonnenstrahlung und später auch der Himmelsstrahlendichte zum Einsatz kamen. Für die Meßkampagnen auf der Zugspitze wurden verschiedenen Einrichtungen verwendet: Max-Planck-Hütte des MPI für Astrophysik, Meßeinrichtung des IFU auf dem Zugspitzgipfel, Umweltforschungsstation 'Schneefernerhaus'.
- Die Messungen auf der Zugspitze (oberhalb der Grundschicht) begrenzen den Meßeffect auf das atmosphärische Aerosol der Stratosphäre und der freien Troposphäre, wovon der dominierende Effect durch das vulkanische Aerosol des Pinatubo hervorgerufen wird. Die Einbeziehung von vor dem Projekt vorgenommenen Kalibrierungsmessungen gestattete die Erfassung der spektralen optischen Aerosoleigenschaften der Stratosphäre und der freien Troposphäre seit 1990. Ebenso wurden noch Daten vom Herbst 1996 hinzugefügt, die den Zustand einer unbelasteten Stratosphäre und freien Troposphäre zeigen. Damit ist eine Charakterisierung der Verhältnisse vor und nach dem Pinatubo-Ausbruch möglich.
- Die Weiterentwicklung der eingesetzten Inversionsprozeduren und der Meßtechnik für die Bestimmung der columnaren Aerosolgrößenverteilung, speziell Erweiterungen zur Untersuchung auch größerer Aerosolpartikeln der Supermicron-Fraktion. Hierzu gehört die zusätzliche Berücksichtigung von Daten der winkelabhängigen Aureolenhelligkeit zusammen mit der spektralen optischen Dicke in der zufallsgesteuerten nichtlinearen Inversionsprozedur. Sie ermöglichte eine Reduzierung des Inversionsfehlers im Radienbereich bis ca. 4 μm . In die gleiche Richtung führte die Umrüstung eines Spektralfotometers für Messungen im IR-Bereich für die Wellenlängen von 1.1 - 2.19 μm .
- Versuche zur Messung von spektralen optischen Dicken im IR-Bereich von 1.1 - 2.19 μm . Dazu wurde ein Versuchsaufbau eines Radiometers mit einer PbS-Diode realisiert auf der Basis der bisher eingesetzten Spektralradiometer mit Si-Diode. Der Versuchsaufbau hatte 5 Kanäle im angegebenen Wellenlängenbereich, die sich auf 'Aerosol'-Kanäle (gasabsorberfreie Spektralbereiche) beziehen. Die Versuche zeigten, daß für eine Messung so niedriger optischer Dicke, wie sie Ende 1995 und 1996 auf der Zugspitze vorlagen, die

Temperaturstabilisierung unzureichend war und der Effekt sich nicht signifikant aus dem Background-Signal abhob. Erst Ende 1996 mit einer verbesserten Temperaturstabilisierung konnten erste Ergebnisse auch unter diesen Bedingungen erhalten werden, so daß speziell für die optischen Eigenschaften der Pinatubo-Aerosols für diesen Wellenlängenbereich keine Ergebnisse mehr gewonnen werden konnten. Ungeachtet dessen konnte das Gerät schon für Bedingungen mit hohen optischen Dicken zum Einsatz kommen (z.B. 1995 in Senegal (Desert- Aerosol) und 1997 bei ACE-2 (Marine-Boundary-Layer Aerosol)).

- Bestimmung von columnaren Aerosolgrößenverteilungen mit Hilfe der entwickelten Inversionsprozeduren und Anpassung von multimodalen logarithmischen Normalverteilungen, wie sie in den einschlägigen Aerosolmodellen (d'Almeida et al., 1991, GADS, 1997) Verwendung finden (r_0 , σ_0 , N_0). Auf dieser Basis wurde die columnare Aerosolmasse und Oberfläche der Moden abgeschätzt. Die Einbeziehung von Aureolendaten reduzierte die Überbetonung von Moden im Supermicronbereich ($r \geq 1 \mu\text{m}$) und machte eine Überarbeitung früher bestimmter Aerosolgrößenverteilungen erforderlich.
- Anwendung des gekoppelten Inversions-Strahlungstransfer-Programms CIRATRA (Coupled Inversion RAdiantion TRAnsfer, Wendisch & von Hoyningen-Huene, 1992, 1994) auf kombinierte Messungen von spektraler optischer Dicke und Himmelshelligkeit bei völlig wolkenfreiem Himmel zur zusätzlichen Bestimmung von Phasenfunktion, Asymmetriefaktor und Brechungsindex. Damit liegen bis auf die Single Scattering Albedo alle wesentlichen klimarelevanten Aerosolparameter für das stratosphärische Vulkanaerosol vor, die zur Berechnung des Strahlungstransfers benötigt werden.
- Entsprechend der Fortführung des Antrags wurden, vor allem im letzten Jahr der Laufzeit, Berechnungen von auf- und abwärtsgerichteten kurzwelligen Strahlungsflüssen vorgenommen, die eine Abschätzung der Änderung der kurzwelligen Strahlungsbilanz am Oberrand der Atmosphäre gestatteten. Dazu wurde ein spektrales Strahlungsflußmodell auf der Basis des Strahlungskodes von Nakajima & Tanaka, 1988 verwendet, das anhand experimenteller abwärtsgerichteter Strahlungsflüsse validiert ist.

3. Erzielte Ergebnisse

3.1 Zeitlicher Verlauf der spektralen optischen Dicke und Größenverteilung des Pinatubo-Aerosols

Das direkt erhaltene Ergebnis der Messungen auf der Zugspitze ist der Spektralverlauf der optischen Dicke. Die Messungen erfolgten mit den Spektralradiometern ASP (Atmosphären-Spektral-Photometer) die in der Arbeitsgruppe des Projektleiters entwickelt worden sind. Von den 90 verfügbaren Spektralkanälen verfügten 80 über eine zuverlässige Kalibrierung, so daß die optische Dicke mit dieser Auflösung im Wellenlängenbereich von 0.35 - 1.1 μm gemessen werden konnte. Die Bandbreite der Kanäle variierte zwischen 8 und 15 nm.

Im Rahmen dieses Berichts wird vor allem auf den spektralen Verlauf der optischen Dicke und ihre zeitliche Änderung eingegangen, da eine zeitliche Darstellung von nichtspektralen Daten wesentlich häufiger und besser im Rahmen der beteiligten LIDAR-Projekte vorgenommen ist (Ansmann et al, 1997). Die spektrale Information allerdings für die Inversion von columnaren Größenverteilungen, für die Berechnung von Strahlungsflüssen und für die Vergleichbarkeit

und Homogenisierung von verschiedenen LIDAR-Datensätzen (unterschiedliche Wellenlängen) benötigt wird.

Die erhaltenen spektralen optischen Dicken der einzelnen durchgeführten Kampagnen seit 1990 bis 1996 sind in Abb. 1 als mittlere spektrale Verläufe dargestellt. Die Darstellung zeigt deutlich, daß sich die optische Dicke sowohl der Größe nach als auch bezüglich des spektralen Verlaufs durch den Impact des vulkanischen Pinatubo-Aerosols in der Stratosphäre während dieser Episode änderte.

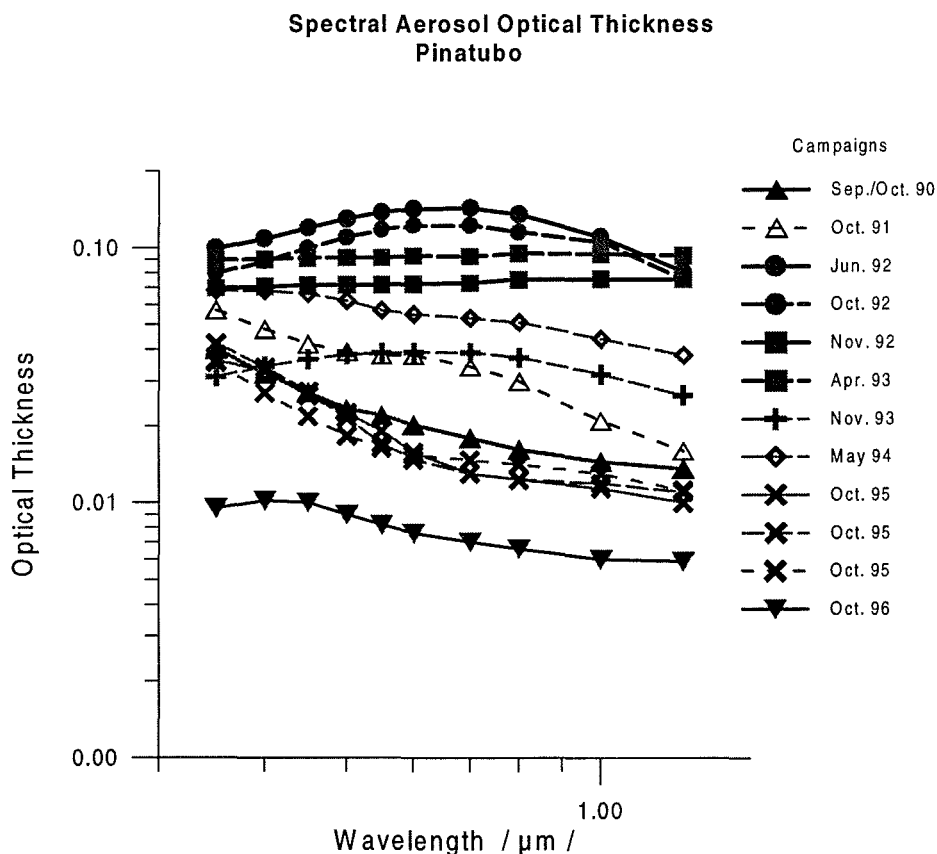


Abb. 1: Spektralverläufe der optischen Dicke für die Meßkampagnen auf der Zugspitze (2965 m) mit dem optischen Einfluß von Stratosphäre und freier Troposphäre. Als Background Verhältnisse können die Daten vom Oktober 1996 dienen.

Um den Beitrag des Pinatubo-Aerosols vom natürlichen Background-Aerosol in der freien Troposphäre und unter normalen Stratosphärenbedingungen zu unterscheiden, hatten wir ursprünglich den Zustand vom September 1990 als ungestörten stratosphärischen Zustand betrachtet, zumal er in der selben Größenordnung und einen ähnlichen Spektralverlauf hatte, wie die Daten von Oktober 1995. Jedoch die Messungen vom Oktober 1996 zeigten eine noch erheblich demgegenüber reduzierte optische Dicke. Den Daten ist auch zu vertrauen, da von mehreren verschiedenen Radiometern während der ACE-2 Radiometer-Kalibrierungskampagne RAD-I-CAL 96 das gleiche Ergebnis erhalten wurde. Daher ist offensichtlich der Background-Zustand der stratosphärischen Aerosolbelastung niedriger als ursprünglich angenommen. Das trifft sich ebenfalls mit Ergebnissen von Jaeger, 1997, der ebenfalls eine erheblich kleinere Rückstreuung in den LIDAR-Daten des IFU-LIDAR's fand.

Daß der Zustand von 1990 nicht der Background-Zustand sein konnte, zeigte sich während der Abklingphase ab November 1993 als der kurzwellige Teil ($< 0,45 \mu\text{m}$), die Werte von 1990 erreichte, während im sichtbaren bzw. im nahen IR immer noch deutlich höhere Werte der optischen Dicke gemessen wurden. Offensichtlich hatte das Pinatubo-Aerosol einen erheblichen Teil von Partikeln mit Radien unter $0.1 \mu\text{m}$ durch Koagulation in größere Teilchen inkorporiert. Erst zum Herbst 1995 wurde der Zustand von 1990 wieder erreicht. Damit hat sich die im Zwischenbericht von 1995 angegebene Halbwertszeit von 10 Monaten bestätigt, die aus dem Trend der exponentiellen Abnahme der optischen Dicke für das Pinatubo-Aerosol ergab.

Der Spektralverlauf zeigt in den verschiedenen Phasen in der Regel von einem Potenzverlauf abweichende Kurven. Dennoch wurde für die Parametrisierung des Spektralverlaufs die Form eines Potenzgesetzes verwendet, wobei es auf verschiedene Spektralbereiche angewendet wurde, um den unterschiedliche Krümmungsverläufen Rechnung tragen zu können.: a) gesamter Spektralbereich $0.35 - 1.1 \mu\text{m}$, b) reduzierter Spektralbereich $0.35 - 0.6 \mu\text{m}$. Mit diesen Parametrisierungen sind Vergleichsbetrachtungen zwischen unterschiedlichen LIDAR-Wellenlängen durchführbar, die von den beteiligten Gruppen auch zur Homogenisierung der unterschiedlichen LIDAR-Datensätze verwendet werden.

$$\delta_A(\lambda_2) = \delta_A(\lambda_1) (\lambda_2 / \lambda_1)^{-\alpha^*}$$

λ_1 und λ_2 sind die unterschiedlichen Wellenlängen, α^* der Spektralabfall des reduzierten Spektralbereichs, für den die Parametrisierung gültig sein soll. Im Fall des Angström'schen Potenzgesetzes ist $\lambda_1 = 1.0 \mu\text{m}$ und α der Spektralabfall für den gesamten gemessenen Spektralbereich von $0.35 - 1.1 \mu\text{m}$. Die entsprechenden Parameter, die für die einzelnen Kampagnen gewonnen wurden sind in Tabelle 1 enthalten. Die entsprechende optische Dicke für $0.5 \mu\text{m}$ Wellenlänge ist zusammen mit Ergebnissen aus SAGE-II und AVHRR Satellitendaten in Abb. 2 dargestellt.

Die Satellitendaten liefern schon für das Jahr 1993 wesentlich niedrigere optische Dicken als die bodengestützten Radiometer und die LIDAR-Geräte. Für das Jahr 1994 werden keine Ergebnisse mehr für das Pinatubo-Aerosol angegeben. Offensichtlich sind sie nicht mehr in der Lage, die Aerosolwolke im unteren Teil der Stratosphäre vollständig zu erfassen.

Wie schon in den Zwischenberichten erwähnt, zeigt das Pinatubo-Aerosol in der Hauptphase Frühjahr 1992 bis Frühjahr 1993 einen flachen Spektralverlauf. Auch darüber hinaus bleibt der flache Spektralverlauf bis zum Herbst 1993 erhalten. Erst im Frühjahr 1994 stellt sich wieder eine Abfalltendenz im Spektralverlauf ein, die sich in der Folgezeit weiter verstärkt. Die entsprechenden Trübungsparameter für die Parametrisierungen sind in Tabelle 1 für alle Kampagnen, die in diesem Zeitraum stattfanden enthalten. Die Daten der eigenen Meßkampagnen wurden noch durch Daten ergänzt, die vom DWD, Observatorium Lindenberg gemessen wurden.

Die Daten zeigen deutlich einen Jahresgang mit einem Maximum im Frühjahr und einem Minimum im Herbst. Ursache für den Jahresgang können jahreszeitliche Zirkulationsprozesse in der Stratosphäre sein, die jeweils im Frühjahr Aerosol aus anderen Breiten oder durch Tropopausenfaltungen in die Stratosphäre bringen.

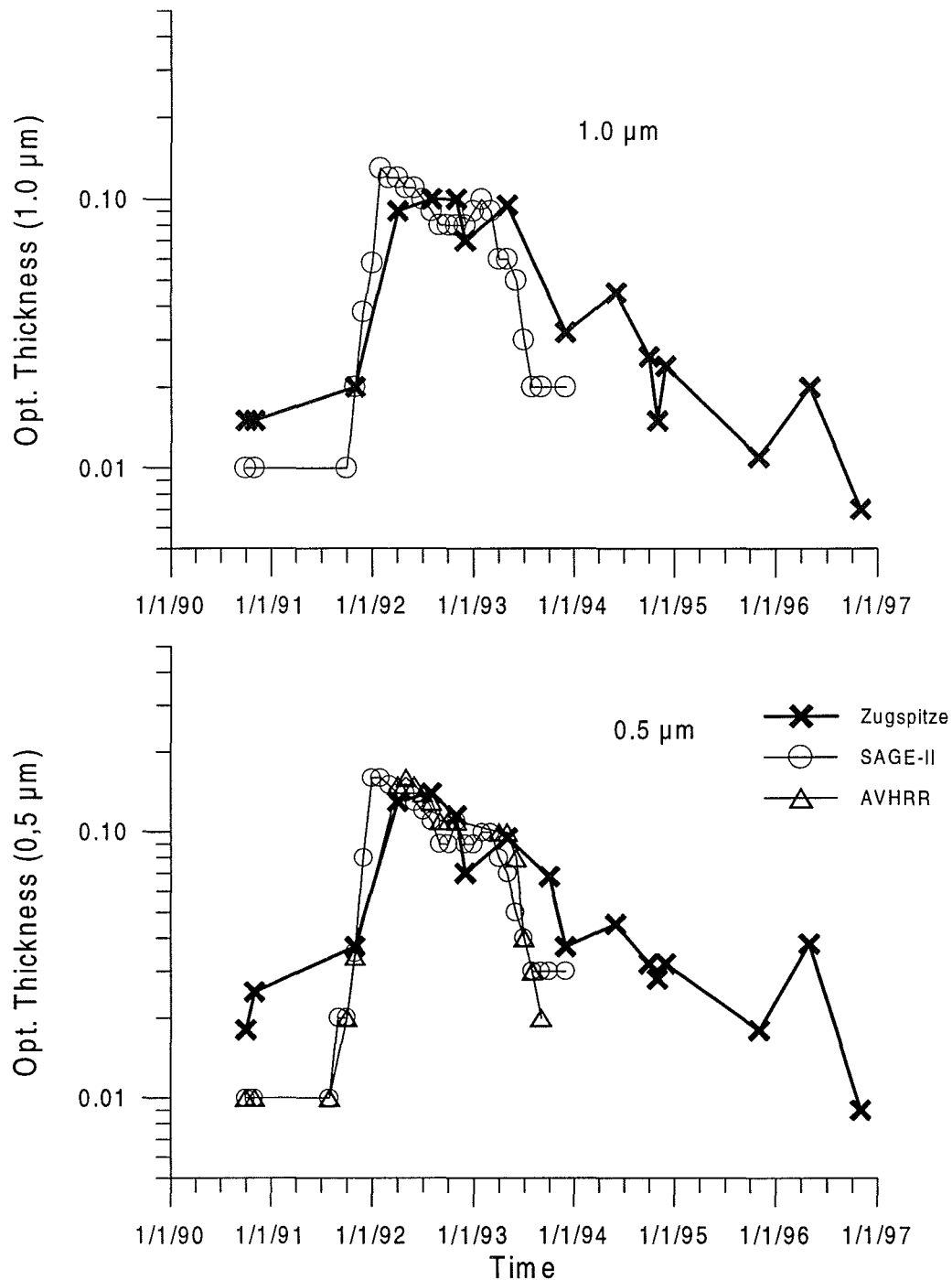


Abb. 2: Vergleich optischer Dicken der Messungen auf der Zugspitze und Retrievals von SAGE-II und AVHRR für 50°N für 0.5 μm und 1.0 μm Wellenlänge.

Die spektralen optischen Dicken des Pinatubo-Aerosols dieser Meßkampagnen sind von Ansmann et al., 1998 mit den Ergebnissen der LIDAR-Messungen (Raman-LIDAR der GKSS) verglichen worden. Dabei zeigten sich in den meisten Fällen Übereinstimmungen bei den Wellenlängen 1.064 und 0.532 μm. Während der Hauptphase des Pinatubo-Einflusses gab es auch Übereinstimmungen bei 0.355 μm.

Tabelle 1: Übersicht über die Trübungsparameter α und $\beta = \delta_A(1,0 \mu\text{m})$ des Angström'schen Potenzgesetzes für den gesamten Spektralbereich von $0,35 - 1,1 \mu\text{m}$ und α^* für den reduzierten Spektralbereich von $0,35 - 0,6 \mu\text{m}$, sowie die optische Dicke des Aerosols $\delta_A(0,5 \mu\text{m})$ für eine Wellenlänge von $0,5 \mu\text{m}$.

Zeitraum	α	β	α^*	$\delta_A(0,5 \mu\text{m})$
Sept. 1990	1.0	0.015	1.4	0.018
Okt. 1990	1.0	0.015	1.0	0.025
Okt. 1991	1.0	0.020	0.9	0.037
März 1992	0.2	0.090	-0.2	0.130
Juni 1992	0.3	0.100	0.0	0.140
Okt. 1992	0.2	0.100	0.1	0.115
Nov. 1992	-0.1	0.070	-0.1	0.070
April 1993	0.0	0.095	-0.1	0.095
Nov. 1993	0.0	0.032	-0.1	0.037
Mai 1994	0.4	0.045	0.4	0.045
Sept. 1994	1.0	0.026	1.4	0.032
Nov. 1994	1.1	0.024	1.4	0.032
Okt. 1995	1.1	0.011	1.5	0.018
Okt. 1996	0.8	0.007	0.8	0.009

Jedoch ab Ende 1994, als die größeren Spektralverläufe wieder auftraten, wurden vor allem bei der Wellenlänge $0,355 \mu\text{m}$ höhere optische Dicken als mit dem LIDAR erhalten. Daher sehen wir in dem stärkeren Spektralabfall, der sich auf den Wellenlängenbereich $0,35 - 0,6 \mu\text{m}$ beschränkt, vor allem einen Einfluß der freien Troposphäre, während ab $0,6 \mu\text{m}$ und mehr der Einfluß des vulkanischen Aerosols in der Stratosphäre noch erkennbar ist.

3.2. Himmelshelligkeitsfunktion

Ab 1993 wurde versucht, zusätzlich zur optischen Dicke die normierte Himmelshelligkeitsfunktion im Almukantar als weiteres optisches Charakteristikum der unbewölkten Atmosphäre zu ermitteln. Die normierte Himmelshelligkeitsfunktion wurde in zwei Wellenlängen ($\lambda = 0,556$ und $0,870 \mu\text{m}$) gemessen. Sie ergibt sich als

$$p_{\text{sky}}(\theta, \lambda) = L_{\text{sky}}(\theta, \lambda) / \int_0^{180} L_{\text{sky}}(\theta, \lambda) \sin \theta \, d\theta$$

mit

$$L_{\text{sky}}(\theta, \lambda) = 1/M \cdot i_{\text{sky}}(\theta, \lambda) / (i_0(\lambda) \exp(-\delta(\lambda) M)),$$

der unnormierten Himmelshelligkeitsverteilung im Almukantar, wobei $i_{\text{sky}}(\theta, \lambda)$ die gemessenen Werte für die Himmelshelligkeit zu den einzelnen Streuwinkeln

$$\theta = \arccos(\sin^2 h + \cos^2 h \cos \varphi)$$

ist. M ist die relativ durchstrahlte Luftmasse zur Sonnenhöhe h , φ ist der Azimutwinkel relativ zur Sonnenposition und $i_0(\lambda)$ ist der Kalbrierwert für das 'extraterrestrische' Gerätesignal,

das durch die Langley-Plot-Kalibrierung gewonnen wird, jedoch hebt sich der Einfluß durch die Verwendung der normierten Himmelshelligkeitsfunktion, wie auch der des Sonnenstandes wieder heraus.

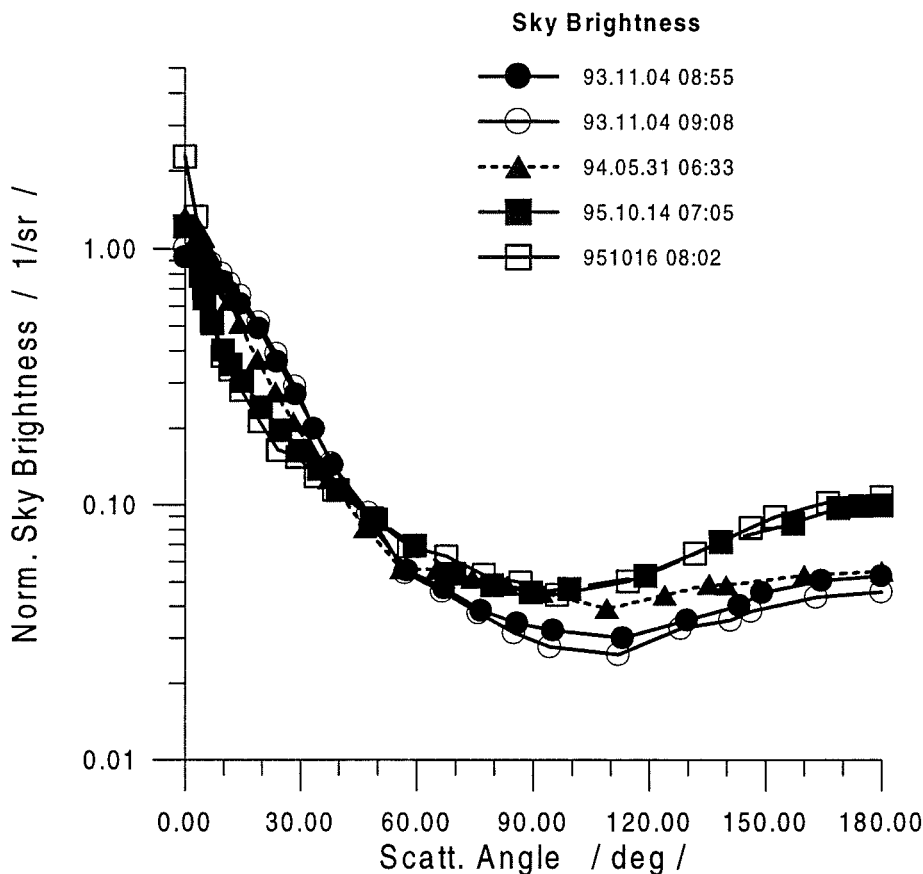


Abb. 3: normierte Himmelshelligkeitsverteilungen von Kampagnen auf der Zugspitze für die Wellenlänge von 870 nm.

Die normierte Himmelshelligkeitsfunktion ist eine für eine Trübungssituation charakteristische Helligkeitsverteilung in Abhängigkeit vom Streuwinkel im Sinne einer Phasenfunktion, allerdings noch mit dem Einfluß der Mehrfachstreuung behaftet. Die Aerosolphasenfunktion wird daraus durch Abtrennen der Mehrfachstreuung mit Hilfe des CIRATRA-Ansatzes ermittelt, vgl. 3.4.. Dennoch ist der Anteil der Mehrfachstreuung unter Zugspitzbedingungen gering und im wesentlichen auf die Rayleighstreuung beschränkt. Daher lassen sich in Spektralkanälen, in denen der Einfluß der Rayleighstreuung gering ist (z.B. bei $\lambda = 0.87 \mu\text{m}$) deutlich die Veränderungen in der Phasenfunktion der Atmosphäre durch Änderung der columnaren Aerosolmenge und Größenverteilung erkennen, Abb. 3.

Da normierte Himmelshelligkeitsverteilungen erst ab November 1993 vorlagen (die Kampagnen vor Beginn des Projekts sahen solche Messungen nicht vor), konnten nur noch die Daten vom November 1993 den flachen Spektralverläufen der optischen Dicke (α um 0) zugeordnet werden, die als typisch für das vulkanische Aerosol angesehen werden. Begrenzt sind auch noch die Daten vom Mai 1994 verwendbar. Bei allen späteren Kampagnen waren größere Spektralabfälle charakteristisch.

3.3. Aerosolgrößenverteilung

Die spektralen optischen Dicken und die Helligkeitsverteilung in der Sonnenaureole im Streuwinkelbereich von 3 - 12 Grad dienen als Eingangsdaten für die Inversion der columnaren Aerosolgrößenverteilung. Mit Hilfe eines zufallsgesteuerten nichtlinearen iterativen Inversionsansatzes werden Aerosolgrößenverteilungen in Form einer sektionalen Darstellung im Radienbereich von 0.08 - etwa 4 μm

erhalten, Die Inversionsrechnung benötigt als weiteren Eingabeparameter den mittleren Brechungsindex für das Aerosol, der aus der Auswertung der kombinierten Messungen von spektraler optischer Dicke und Himmelshelligkeitsfunktion mit Hilfe des CIRATRA-Ansatzes erhalten wurde, vgl. Abschnitt 3.3.

Beispiele invertierter Größenverteilungen zeigt Abb. 4. Durch die Anpassung von mehrmodalen logarithmischen Normalverteilungen an die sektionale Größenverteilung sind die Modenparameter (r_0 , σ_0 , N_0) für die einzelnen gefundenen Moden I, II, III ermittelt worden, die zum Vergleich mit den in der Literatur verwendeten Aerosolmodellen dienen. Ebenso gestattet die Modendarstellung eine einfache Bestimmung integraler Größen, wie Gesamtmasse oder relative Oberfläche in der durchstrahlten Säule, vgl. Tab. 2.

Für die Bestimmung der Säulenmasse wurde eine Dichte von 1.64 g/cm^3 zugrundegelegt. Die Angaben der Säulenmasse und des Säulenvolumens sind etwas kleiner als die Angaben, die aus den LIDAR-Messungen, vgl. Ansmann et al., 1997. Das liegt daran, daß dort der effektive Radius einer monomodalen Verteilung für alle Abschätzungen zugrundegelegt wurde, während für die Berechnungen dieses Projekts multimodale Verteilungen mit den Parametern der Tabelle 2 Verwendung fanden.

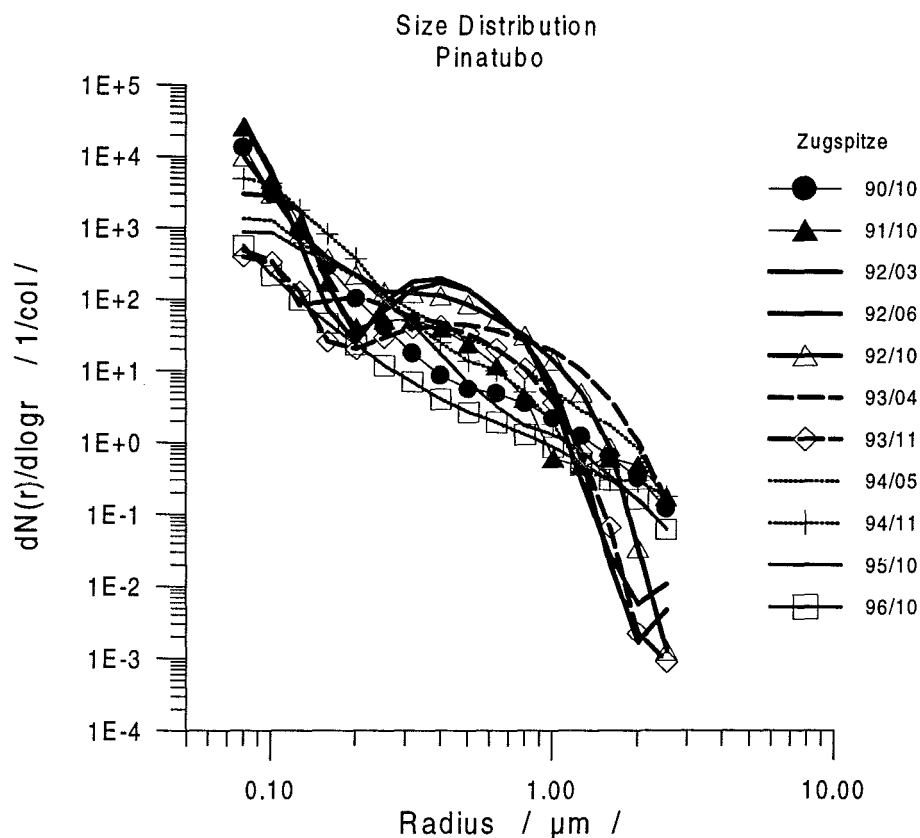


Abb. 4: Invertierte columnare Aerosolgrößenverteilungen zu den Meßkampagnen auf der Zugspitze (Gesamteffekt).

Unsere Erfahrungen zeigten, daß der sehr oft verwendete effektive Radius kein geeigneter Parameter ist, um die klima-relevanten optischen Eigenschaften des Aerosols zu beschreiben, weder der spektrale Gang der optischen Dicke noch die Phasenfunktion lassen sich mit dem effektiven Radius ausreichend gut darstellen, so daß vor allem Aussagen zu spektralen Strahl-dichten und Strahlungsflußdichten, die damit gewonnen wurden, fehlerhaft sind. Für die Modellierung des Strahlungsfelds werden multimodale Verteilungen oder die optischen Parameter direkt benötigt.

Während Mode II und III im Bereich geringer Inversionsfehler liegen, liegt die Mode I am Rande des invertierbaren Größenbereichs. Das Vorhandensein sehr kleiner Partikeln (Mode I) kann durch die verwendete Inversionsprozedur noch ermittelt werden, jedoch der Hauptteil der Mode liegt außerhalb des invertierbaren Bereichs, so daß vor allem die integralen Größen, wie Masse und Oberfläche nicht überbewertet werden dürfen. Deutlich ist das Verschwinden des stratosphärischen Background-Aerosols in Mode I mit der Zunahme der Hauptmode des vulkanischen Aerosols (Mode III).

Tabelle 2: Modenparameter der Aerosolgrößenverteilungen für logarithmische Normalverteilungen zu den einzelnen Meßkampagnen.

Zeit	Mode Nr.	Radius r_0 μm	σ_0	N_0	Säulen-masse mg/m^2	Säulen-oberfläche m^2/m^2
Sept. 1990	I	0.049	1.46	6050.89	7.13	0.2466
	III	0.659	1.51	2.19	6.95	0.0168
Okt. 1990	I	0.042	1.55	6565.46	6.31	0.2226
	II	0.139	1.80	28.41	1.87	0.0138
	III	0.637	1.60	1.53	5.51	0.021
Okt. 1991	I	0.046	1.95	1737.11	6.59	0.1140
	III	0.339	1.56	8.78	4.31	0.0189
März 1992	II	0.260	1.39	83.13	12.38	0.0883
	III	0.549	1.28	17.73	20.34	0.0795
Juni 1992	II	0.216	1.42	136.01	12.33	0.1023
	III	0.479	1.35	27.87	23.73	0.0963
Okt. 1992	II	0.131	1.53	246.01	6.48	0.0766
	III	0.497	1.46	27.96	33.87	0.1159
Nov. 1992	II	0.218	1.72	56.15	11.39	0.0608
	III	0.771	1.38	4.82	18.20	0.0444
April 1993	II	0.210	1.36	37.89	2.80	0.0256
	III	0.553	1.48	22.46	39.21	0.1176
Nov. 1993	II	0.273	1.44	18.38	3.53	0.0225
	III	0.622	1.39	4.89	8.23	0.0243
Mai 1994	II	0.119	1.77	216.07	8.23	0.0744
	III	0.525	1.53	4.87	8.23	0.0243
Sept. 1994	I	0.041	1.60	10288	10.16	0.3449
	II	0.165	1.52	46.31	2.38	0.0226
	III	0.657	1.45	3.27	8.93	0.0234
Nov. 1994	I	0.037	1.72	9937.53	9.98	0.3132
	II	0.211	1.52	21.26	2.27	0.0169
	III	0.870	1.39	1.71	9.46	0.0202
Okt. 1995	I	0.050	1.47	6683,12	7.48	0.2588
	III	0.643	1.52	1.54	5.61	0.0123
Okt. 1996	I	0.078	1.43	832.87	5.37	0.1857
	III	0.636	1.52	1.14	4.14	0.0100

Das normale stratosphärische Background-Aerosol scheint durch Koagulation im vulkanischen Aerosol integriert zu werden. Erst ab September 1994 ist wieder eine Ausbildung einer stratosphärischen Background Mode zu beobachten.

Auf eine Anpassung einer Mode für Teilchen größer 1 μm Radius wurde verzichtet, da vor allem für die Meßkampagnen vor November 1993 keine Himmelshelligkeitsmessungen (speziell der winkelabhängigen Aureolenhelligkeit vorlagen) und dann die Bestimmung großer Teilchen unsicher ist.

Die Mode II ist sehr variabel mit Mode-Radien um 0.2 μm . Sie umfaßt die kleineren Partikel des Pinatubo-Aerosols

Die Hauptmode des stratosphärischen Aerosols ist die Mode III, deren Modenradius r_0 von ca. 0.3 μm im Oktober 1991 bis auf 0.7 μm gegen Ende 1994 anwächst, vgl. Abb. 5. Es ist anzunehmen, daß die Mode III in den Ergebnissen von 1990 ein Rest gealterten vulkanischen Aerosols aus vorangegangenen Vulkanausbrüchen (El Chichon) ist. Auch 1996 ist diese Mode, wenn auch sehr schwach, noch erkennbar.

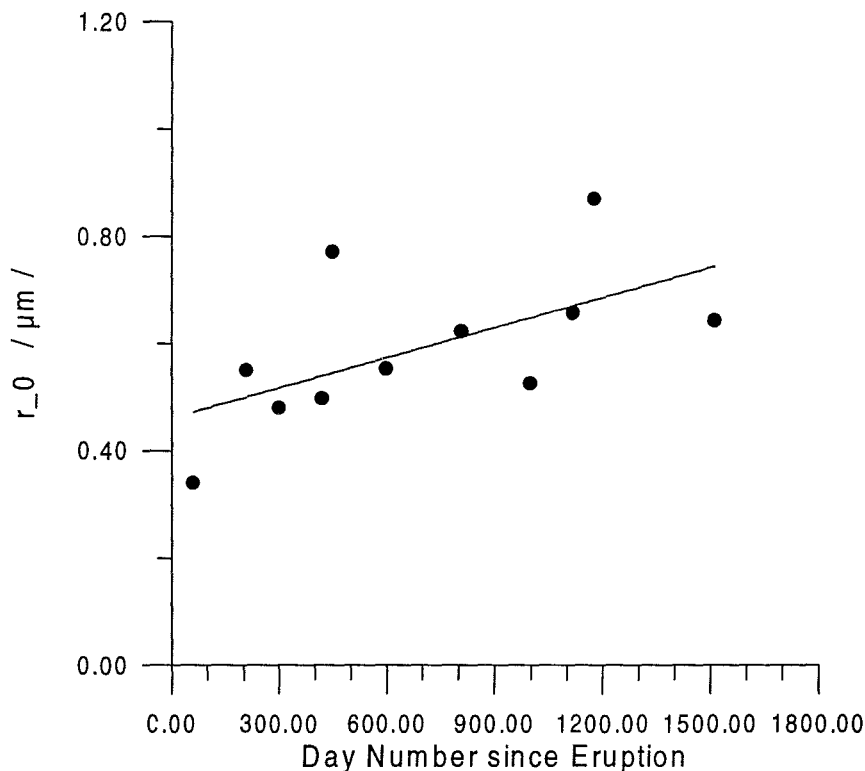


Abb. 5: Mode Radius r_0 für Mode III, der optischen Hauptmode des stratosphärischen Vulkanaerosols.

Unsere Ergebnisse zeigen eine signifikante Tendenz zum Anwachsen des Modenradius der Mode III, die in Form folgender Parameterbeziehung für den Modenradius mit der Zeit t in Tagen seit dem Ausbruch angegeben werden kann:

$$r_0(t) = 0.000187 * t [\text{d}] + 0.469.$$

Vergleichen wir die erhaltene Modenstruktur, so ist sie in keiner Weise vergleichbar mit den Annahmen, die in den Aerosolmodellen (WCP 55, 1983 und d'Almeida et al, 1991) getroffen werden. Dort wird zwar eine Mode für H_2SO_4 -droplets bei $r_0 = 0.069 \mu\text{m}$ angegeben, die mit der Mode I Übereinstimmungen zeigt, die Mode III fehlt in den Modellangaben völlig. Mode III bestimmt jedoch im wesentlichen die optischen Eigenschaften des Pinatubo-Events und ist

mit den Ergebnissen für den effektiven Radius vergleichbar. Dagegen wird in den Modellen eine Mode bei $r_0 = 0.217$ angenommen, die in den vorliegenden Ergebnissen aus den Meßkampagnen (Mode II) nur untergeordnete Bedeutung hat oder nur für nicht gealtertes vulkanisches Aerosol zutreffen kann.

Die Hauptmode, die in unseren Meßkampagnen gefunden werden konnte, ist nicht in den Aerosolmodellen erwähnt. Andererseits, experimentelle Ergebnisse zu Untersuchungen der Modenstruktur des El-Chichon-Aerosols (Pueschel et al. 1988, Jeager & Hoffman, 1991) zeigen eine ähnliche Modenstruktur, wie sie aus den Inversionsrechnungen zu den Meßkampagnen erhalten wurde.

3.4. Brechungsindex und Phasenfunktion

Ab November 1993 konnten auf der Zugspitze kombinierte Messungen von spektraler optischer Dicke und Himmelshelligkeitsfunktion im Almukantar durchgeführt werden (vgl. 3.1. und 3.2.). Diese bilden die Eingangsdaten für das gekoppelte Inversions-Strahlungstransfer-Programm CIRATRA (Coupled Inversion Radiation TRANSfer), Wendisch & von Hoyningen-Huene, 1992, 1994, zur Bestimmung von Brechungsindex, Phasenfunktion, Asymmetrieparameter und Angaben zur Teilchenform. Dieser Schließungsansatz zwischen spektraler optischer Dicke, Aureolenhelligkeitsverteilung und Himmelshelligkeitsverteilung gestattet die genannten Größen als columnare Werte zu ermitteln.

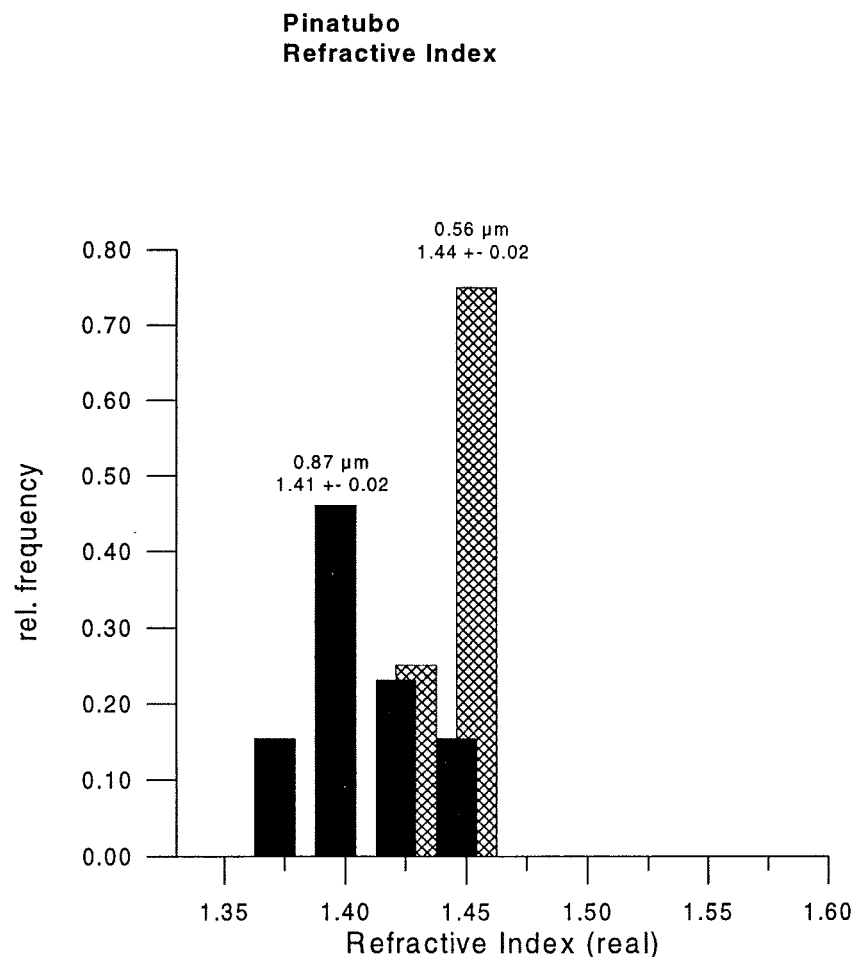


Abb. 6: Relative Häufigkeiten der erhaltenen Brechungsindizes (Realteil) für die Wellenlängen 556 und 870 nm.

Generell kann festgestellt werden, daß alle kombinierten Messungen, die den Einfluß des Pinatubo-Aerosols enthielten, gut mit der Annahme der Mie-Theorie für die Lichtstreuung an den Aerosolteilchen zu lösen waren. Die RMSD Werte zwischen gemessener und berechneter Himmelshelligkeitsfunktion lagen in der Regel bei 4 ... 5 %. Daher kann die Kugelform für die streuenden Partikel bestätigt werden. Aufwendige Kalkulationen zur Anwendung anderer nichtsphärischer Streutheorien konnten entfallen.

In Abb. 6 sind die relativen Häufigkeiten der erhaltenen Werte für den Realteil des Brechungsindex für die beiden verwendeten Wellenlängen (0.87 und 0.556 μm) und die Messungen der Kampagnen von November 1993 und Mai 1994 enthalten, in denen noch ein nennenswerter Einfluß des stratosphärischen Vulkanaerosols in den Spektralverläufen erkennbar war. Als Mittelwerte für den Realteil des Brechungsindex wurden erhalten: $m(0.87 \mu\text{m}) = 1.41 \pm 0.02$ und $m(0.56 \mu\text{m}) = 1.44 \pm 0.02$. Inwieweit die Unterschiede Ausdruck eines spektralen Gangs sind, ist auf Grund der Fehler unsicher.

Die Aerosolmodelle nehmen für vulkanisches Aerosol H_2SO_4 -droplets an, mit Brechungsindices von $m(0.87 \mu\text{m}) = 1.425$ und $m(0.55 \mu\text{m}) = 1.43$. Diesbezüglich besteht Übereinstimmung im Rahmen der Inversionsfehler.

Abb. 7 zeigt die Phasenfunktionen für die Wellenlänge 0.87 μm für das Pinatubo-Aerosol, von den Tagen mit guten Meßbedingungen. Daraus ergeben sich folgende Asymmetrieparameter:

$\lambda / \mu\text{m}$	0.87	0,56
g	$0,76 \pm 0,011$	$0.72 \pm 0,012$

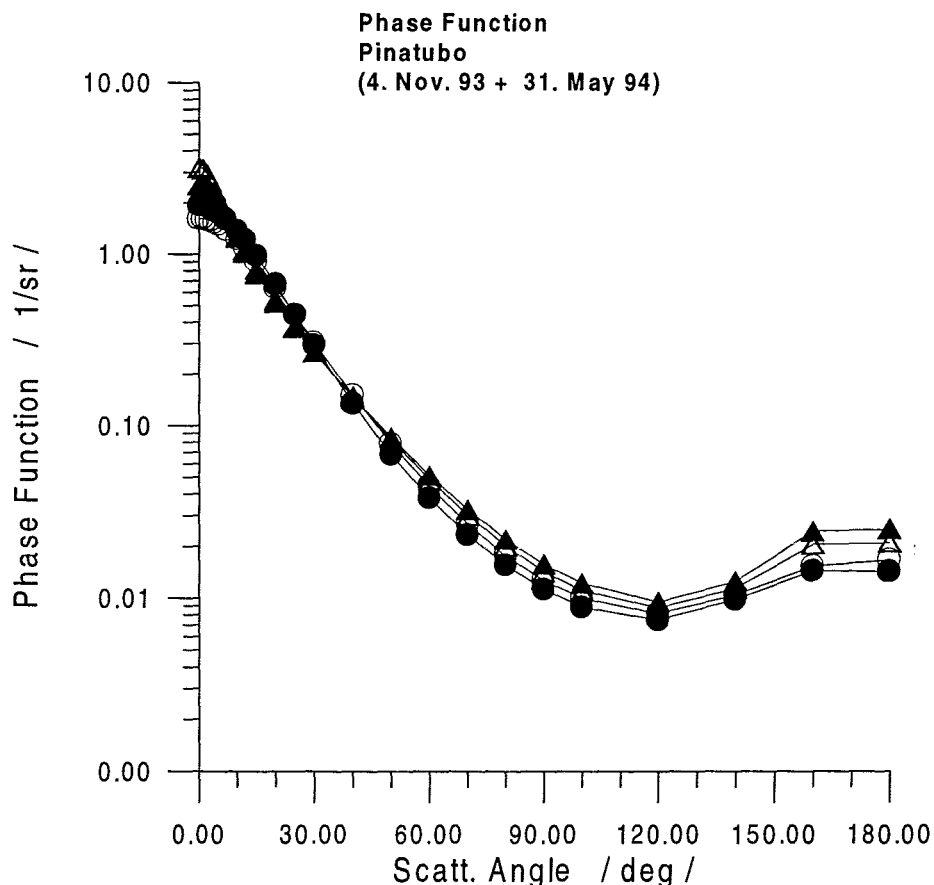


Abb. 7: Aerosolphasenfunktion aus CIRATRA für 870 nm Wellenlänge zu den Messungen vom November 1993 und Mai 1994.

Damit liegen aus indirekten Strahlungsmessungen alle wesentlichen klimarelevanten optischen Aerosolparameter vor. Ausnahme bildet die Single Scattering Albedo, für die zum Zeitpunkt der Messungen der erweiterte Schließungsansatz noch nicht fertig entwickelt war.

4. Abschätzungen zum kurzwelligen Strahlungsforcing durch das stratosphärische Vulkanaerosol

Mit dem Vorliegen aller wesentlichen klimarelevanten optischen Aerosolparameter (spektrale optische Dicke und Phasenfunktion bzw. Asymmetrieparameter) ist eine Abschätzung des kurzwelligen Strahlungsforcings, d.h. die Bestimmung der Strahlungsbilanzänderung am Oberrand der Atmosphäre, durch das Pinatubo Aerosol möglich. Dazu wurde ein spektrales kurzwelliges Strahlungsflußmodell erstellt, das für die gegebenen optischen Aerosolparameter die auf- und abwärtsgerichteten Strahlungsflüsse in 512 Spektralkanälen im Wellenlängenbereich von 0.3 - 3.9 μm monochromatisch für jede mögliche Sonnenhöhe berechnet. Die notwendigen spektralen Eingangsdaten werden durch Extrapolation der gemessenen Größen gewonnen. Die Integration über die Spektralkanäle liefert die kurzwelligen ab- und aufwärtsgerichteten Flüsse am Unterrand und Oberrand der Atmosphäre. Die Wichtung dieser Ergebnisse mit der Häufigkeitsverteilung der verschiedenen Sonnenstände und der Bezug auf eine reine Molekül-atmosphäre liefert globale und zonale Mittelwerte für das kurzwellige Strahlungsforcing durch das Aerosol.

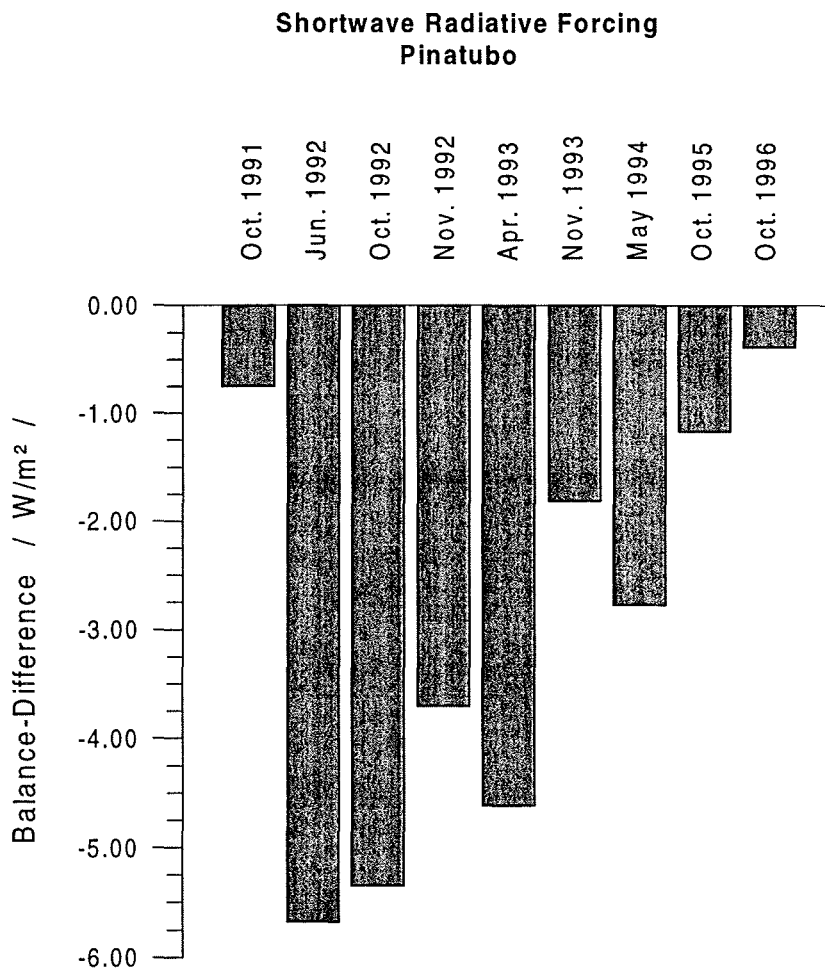


Abb. 8: Kurzwelliges Strahlungsforcing des Pinatubo-Aerosol am Oberrand der Atmosphäre (bezogen auf eine reine Rayleigh-Atmosphäre).

Die Ergebnisse für das kurzweilige Strahlungsforcing durch das Pinatubo Aerosol zum Zeitpunkt der Meßkampagnen enthält Abb. 8. Im Maximum des Pinatubo-Einflusses wurde eine Verringerung der Strahlungsbilanz um $- 5.7 \text{ W/m}^2$ erreicht. Der unbelastete Zustand von Ende 1996 gab zusammen für Stratopshäre und freie Troposphäre einen Wert von $- 0.39 \text{ W/m}^2$. Das Ergebnis steht in Einklang mit Angaben von ERBE. Auch in den Folgejahren (bis in das Jahr 1995 hinein) hat der Pinatubo durch Erhöhung der planetaren Albedo zu einer Absenkung der Strahlungsbilanz beigetragen. Erst mit den Daten vom Herbst 1996 wurde der Zustand von 1990 und 1991 unterschritten, so daß sich wieder so gut wie unbelastete Bedingungen in der Stratosphäre eingestellt hatten.

5. Zusammenfassung

Die im Rahmen des Projekts gewonnenen optischen Charakteristika gestatteten Parameter abzuleiten, die die Strahlungseigenschaften des Pinatubo Aerosols beschreiben. Auf der Basis der gewonnenen Daten konnte optisch relevante columnare Größenverteilung mit ihrer Modenstruktur erhalten werden und dem Aerosolmodell 'volcanic' der Aerosolklimatologie gegenübergestellt werden. Während im dort angenommenen Brechungsindex kein signifikanter Widerspruch zu den Ergebnissen dieses Projekts auftrat, fehlte im 'volcanic' Modell die optische Hauptmode des Pinatubo-Aerosols. Es konnten weiterhin Angaben zum Anwachsen des Modenradius und der Alterung der Mode mit der Zeit in Form einer Regressionsbeziehung abgeleitet werden, die in ein neues Modell für vulkanische Aerosole in der Stratophäre einfließen sollen. Wesentlich für die Abschätzung des kurzweiligen Strahlungsforcings ist die Bestimmung der Phasenfunktion und des Asymmetrieparameters für das Pinatubo-Aerosol. Mit den im Projekt ermittelten klimarelevanten optischen Aerosolparametern für das Pinatubo Aerosol ist das kurzweilige Strahlungsforcing durch den vulkanischen Impakt abgeschätzt worden.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich dem BMBF und dem Koordinator des Verbundprojekts 'Spurenstoffkreisläufe' für die Förderung und Unterstützung danken.

Da die Datengewinnung schon lange vor dem Projekt begonnen hatte, haben an den hier dargestellten Arbeiten, die sich mit der Untersuchung des Pinatubo-Aerosols befaßten, unterschiedliche Projekte, die Rahmen der ehemaligen Arbeitsgruppe an der Universität Leipzig bearbeitet wurden und die damit befaßte Mitarbeiter unterschiedlichen Anteil:

- | | |
|---------------------------|---------------------------------|
| 1. SANA: | Michael Stettler, Torsten Plaul |
| 2. BayFORKLIM: | |
| 3. dieses Projekt: | Peter Posse |
| 4. DFG 'Nichtsphärizität' | Karin Wenzel |
| 5. ACE-2 | Torsten Schmidt |

Allen sei an dieser Stelle für ihre Beiträge gedankt.

Literatur:

d'Almeida G. A., Koepke, P., Shettle, E.P.: Atmospheric aerosol. Global climatology and radiative characteristics. Deepak Publ., Hampton 1991.

Ansmann, A., Mattis, I., Wandinger, U., Wagner, F., Reichhardt, J., Deshler, T.: Evolution of the Pinatubo Aerosol: Raman Lidar Observations of Particle Optical Depth, Effective Radius, Mass, and Surface Area over Central Europe at 53.4°N. *J. Atmos. Sci* 54 (1997) 2630-2641.

Ansmann, A., Mattis, I., Jäger, H., Wandinger, U.: Stratospheric Aerosol Monitoring With Lidar: Conventional Backscatter versus Raman Lidar Observations of Pinatubo Aerosol. *Contr. Atm. Phys.* (1998) (submitted 1997).

GADS, 1997: Koepke, P., Hess, M., Schult, I., Shettle, E.P.: Global aerosol Data set. Theoretical and Applied Climatology, (submitted, 1997).

Jaeger, H., Hoffman, D.: Midlatitude lidar backscatter to mass, area, and extinction conversion model based on in situ aerosol measurements from 1980 to 1987. *Applied Optics* 30 (1991) 127-138.

Jaeger, 1997, personal communication

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

Posse, P., von Hoyningen-Huene, W.: Climate-relevant parameters of stratospheric aerosol under consideration of Pinatubo event. *Contr. Phys. Atmos.* (1998) (submitted 1997).

Pueschel, R.F., Snetsinger, K.G., Livingston, J. M.: Effects of El-Chichon volcanic effluents on stratospheric aerosol dynamics. In: P.E. Wagner, G. Vali (Eds) *Lecture Notes in Physics* (309) 'Atmospheric Aerosols and Nucleation' -Proceedings of the 12 Int. Conference on Atmospheric Aerosol and Nucleation, Vienna 22-27. Aug. 1988 221-223. Springer 1989.

WCP 55: A. Deepak and H. Gerber (Eds): Report of the expert meeting on aerosols and their climatic effects, WMO-Publ. Genf WCP-55 (1983).

Wendisch M. and von Hoyningen-Huene, W.: Optically equivalent refractive index of atmospheric aerosol particles, *Beitr. Phys. Atmosph.* **65**, 293-309 (1992).

Wendisch, M., von Hoyningen-Huene, W.: Possibility of refractive index determination of atmospheric aerosol particles by ground based solar extinction and scattering measurements. *Atmos. Environment* 28 (1994) 785-795.

Korrespondenz bitte an:

Dr. habil. Wolfgang von Hoyningen-Huene
 Universidade de Evora
 Dept. Fisica
 R. Romero Ramalha 59
 P-7000 Evora
 Portugal