

Ein erster Vergleich der optischen Eigenschaften von Partikeln aus Laborfeuern und Modellrechnungen

Katja Hungershöfer, Thomas Trautmann und Jörg Trentmann

Zusammenfassung

Durch die Verbrennung von Biomasse werden Partikel freigesetzt, die u.a. schwarzen Kohlenstoff enthalten. Dieser ist wesentlich für die Absorption der solaren Strahlung in der Atmosphäre verantwortlich. Um den Effekt der emittierten Partikel auf den Strahlungshaushalt quantifizieren zu können, ist die Kenntnis der physikalischen und chemischen Eigenschaften dieser Partikel nötig. Diese sind aber nur zum Teil bekannt.

Dieser Bericht beschreibt eine Methode, die optischen Eigenschaften solcher Partikel unter Verwendung bestimmter Annahmen zu berechnen. Außerdem wird ein erster Vergleich zwischen berechneten Größen und Messungen aus Laborfeuern durchgeführt.

Summary

Biomass burning is an important source for particles containing black carbon, which is known as a strong light absorbing substance. To quantify the effect of such emitted particles on the radiation budget, the knowledge of their physical and chemical properties is necessary. Until now these properties are only partly known.

In the following we describe a possibility of calculating the optical properties of such particles using certain simplifications. Also a first comparison between the calculated values and measurements from lab experiments is shown.

1 Einleitung

Die Waldbrände in Portugal und Kalifornien im August bzw. Oktober des vergangenen Jahres (2003) sind zwei Beispiele für die Verbrennung von Biomasse. Solche Feuer finden aber nicht nur in den gemäßigten und borealen Wäldern statt, sondern auch in sehr viel größerem Maße in den tropischen Wäldern und Savannen (*Andreae, 1991*). Neben solchen Wald- und Buschbränden werden auch die Verbrennung von agrarischen Abfällen, die Nutzung als Brennholz (besonders in den Tropen) und die Holzkohleherstellung unter dem Sammelbegriff der Biomassenverbrennung zusammengefasst. Auf diese Weise werden allein durch die Verbrennung von Biomasse weltweit große Menge an verschiedenen Gasen und Partikeln freigesetzt. Bei den Gasen handelt es sich sowohl um photochemisch aktive Gase wie Kohlenmonoxid, Kohlenwasserstoffe und Stickoxide, als auch um die Treibhausgase Kohlendioxid, Methan und Distickstoffoxid (*Crutzen und Andreae, 1990*). Von den emittierten Partikeln ist bekannt, dass sie die Strahlung durch Streuung und Absorption beeinflussen (direkter Effekt). Außerdem können sie als Wolkenkondensationskerne dienen und so über die Wolkenbildung den Strahlungshaushalt auch indirekt beeinflussen. Die Quantifizierung dieser Effekte stellt allerdings ein Problem dar, da die physikalischen und chemischen Eigenschaften solcher Rauchpartikel nur zum Teil bekannt sind (*Houghton et al., 2001*).

Im Rahmen des Projektes EFEU (*Wurzler et al., 2001*) wurden verschiedene Holzarten unter kontrollierten Bedingungen verbrannt. Die emittierten Gase und Partikel wurden in einen Container geleitet, und die physikalischen und chemischen Eigenschaften

der Rauchpartikel mit unterschiedlichen Messmethoden untersucht. Unser Beitrag innerhalb von EFEU besteht u.a. aus der Berechnung der optischen Eigenschaften mit dafür entwickelten Modellen, die dann mit den experimentellen Daten verglichen werden. Die Methodik der Modellrechnungen und erste Ergebnisse bilden den Inhalt dieses Berichtes.

Im nächsten Abschnitt werden die wichtigsten Eingangsgrößen und Annahmen für die Modelle beschrieben. Im dritten Abschnitt wird kurz auf die für uns relevanten Messungen während der Laborfeuer eingegangen. Mit einem ersten Vergleich zwischen den gemessenen und berechneten optischen Eigenschaften für die Verbrennung von Eiche beschäftigt sich der vierte Abschnitt. Den Abschluss bildet ein Ausblick. Es sei allerdings an dieser Stelle ausdrücklich darauf hingewiesen, dass der hier dargestellte Messvergleich nur eines von insgesamt 14 Laborexperimenten der zweiten EFEU-Kampagne umfasst. Eine detailliertere Analyse und die Berücksichtigung der anderen Messreihen stehen erst am Anfang.

2 Die Berechnung der optischen Eigenschaften

Zur vollständigen Beschreibung der optischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln, zum Beispiel in einem Strahlungstransportmodell, sind ganz allgemein drei Größen notwendig: Der Extinktionskoeffizient k_{ext} , die Einfachstreueralbedo ω_0 und die Phasenfunktion $p(\cos \Theta)$ als Funktion des Streuwinkels Θ . Der Extinktionskoeffizient beschreibt die Schwächung der Strahlung durch die Streuung und die Absorption der Partikel und ergibt sich als Summe aus Streukoeffizient k_{sca} und Absorptionskoeffizient k_{abs} . Die Einfachstreueralbedo gibt den Anteil der Streuung an der Extinktion an ($\omega_0 = k_{sca}/(k_{sca} + k_{abs})$). Im Fall eines rein streuenden Mediums ist $\omega_0 = 1$. Die Phasenfunktion beschreibt die Winkelabhängigkeit des Streuprozesses.

Im Folgenden werden die Annahmen und Methoden beschrieben, mit denen diese optischen Eigenschaften für Aerosolpartikel aus Vegetationsfeuern berechnet werden. Dabei wird zum besseren Verständnis zunächst auf eine Berücksichtigung des Feuchtewachstums der Partikel verzichtet (Abschnitt 2.1) und erst anschließend die Modifikation durch die Berücksichtigung dieses Effektes diskutiert (Abschnitt 2.2).

2.1 Modellierung der trockenen Partikel

Die Partikel aus der Biomassenverbrennung haben im Allgemeinen verschiedenste Form und Größe und eine komplexe chemische Struktur. In erster Näherung lässt sich die Partikelform durch Kugeln approximieren. Unter dieser Annahme können die optischen Eigenschaften eines einzelnen Partikels mit Hilfe der Mie-Theorie berechnet werden. Auf die Darstellung dieser Theorie wird an dieser Stelle verzichtet und stattdessen auf *Bohren und Huffman* (1983) verwiesen. Voraussetzung für die Verwendung der Mie-Theorie ist allerdings, dass der komplexe Brechungsindex der Partikel bekannt ist. Im Fall der Biomassenverbrennung zählt aber gerade der Brechungsindex zu den am schlechtesten charakterisierten Größen (*Guyon et al.*, 2003). Um dennoch eine Abschätzung für den Brechungsindex zu erhalten, betrachtet man die einzelnen Bestandteile der Partikel und berechnet unter Zuhilfenahme von Mischungsregeln einen effektiven Brechungsindex. Im Hinblick auf die Berechnung der optischen Eigenschaften des Biomassenaerosols beschränkt man sich dabei häufig auf ein Modell aus zwei Komponenten (*Lenoble*, 1991): Einer aus organischen und anorganischen Substanzen bestehenden Komponente, die nicht oder nur schwach absorbierend ist und dem stark absorbierenden schwarzen Kohlenstoff als zweiter

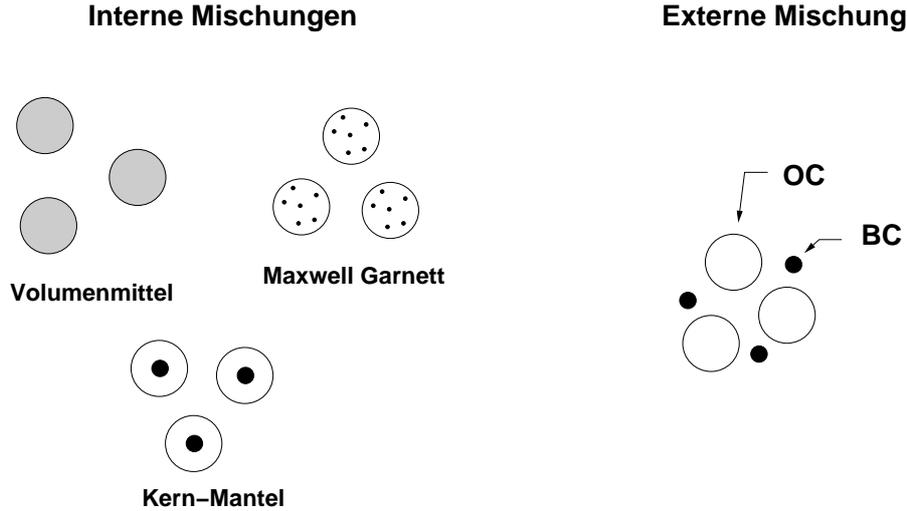


Abbildung 1: Mögliche Mischungen für die Modellrechnungen. OC steht für organischen Kohlenstoff und BC für den schwarzen Kohlenstoff

Komponente. Dabei wird die gering absorbierende Komponente häufig vereinfachend als organischer Kohlenstoff bezeichnet.

Diese beiden Komponenten können für die Rechnungen auf verschiedene Arten zu einem Modellpartikel zusammengesetzt werden. Grundsätzlich unterscheidet man zwischen einer internen und einer externen Mischung. Während bei der internen Mischung beide Komponenten in ein und demselben Partikel auftreten (Abbildung 1, linke Seite), bilden der organische und der schwarze Kohlenstoff bei einer externen Mischung separate Partikel (Abbildung 1, rechts). Der einfachste Modellansatz einer internen Mischung ist ein Volumenmittel der beiden Substanzen, dargestellt durch die grauen Partikel in der linken oberen Ecke der Abbildung 1. In diesem Fall erhält man einen effektiven Brechungsindex für das zusammengesetzte Partikel, indem man den Brechungsindex der beiden Einzelbestandteile mit dem jeweiligen Volumenanteil wichtet. Für unsere Rechnungen verwenden wir eine Mischung nach *Maxwell Garnett* (1904). Wie die rechte obere Abbildung der drei internen Mischungen in Abbildung 1 zeigt, bildet dabei die absorbierende Substanz sphärische Inklusionen in dem organischen Material. Der effektive Brechungsindex m ergibt sich in diesem Fall nach *Chýlek et al.* (1988) als

$$m = \sqrt{m_{OC}^2 \frac{m_{BC}^2 + 2 m_{OC}^2 + 2 v_{BC} (m_{BC}^2 - m_{OC}^2)}{m_{BC}^2 + 2 m_{OC}^2 - v_{BC} (m_{BC}^2 - m_{OC}^2)}} . \quad (1)$$

Dabei ist v_{BC} der Volumenanteil des schwarzen Kohlenstoffs. Er lässt sich aus dem in den Messungen bestimmten Massenanteil mit Annahmen über die Dichten der beiden Komponenten berechnen. Im Folgenden werden mit $\rho_{BC} = 1.8 \text{ g/cm}^3$ und $\rho_{OC} = 1.2 \text{ g/cm}^3$ Werte aus *Ross et al.* (1998) verwendet. Die Größen m_{BC} und m_{OC} in Gleichung (1) sind die komplexen Brechnungindizes des schwarzen bzw. organischen Kohlenstoffs. Wellenlängenabhängige Werte für m_{BC} sind aus *Fenn et al.* (1985) entnommen. Die Werte für den organischen Kohlenstoff stammen für Wellenlängen zwischen 2 und 19 μm aus Messungen von *Sutherland und Khanna* (1991) an Biomassenaerosol. Außerhalb dieses Spektralbereichs werden Werte für Ammoniumsulfat aus *Toon et al.* (1976) verwendet, da der Brechungsindex vieler organischer Substanzen nach *Sloane* (1983) mit den Werten von

Ammoniumsulfat vergleichbar ist. Die Werte der aus Gleichung (1) berechneten effektiven Brechungsindizes für verschiedene Massenanteile des schwarzen Kohlenstoffs bei 550 nm zeigt die Tabelle 1.

Rußanteil	2%	8%	12%	20%
Realteil	1,545	1,543	1,542	1,540
Imaginärteil	0,005	0,020	0,03	0,051

Tabelle 1: Real- und Imaginärteil des effektiven Brechungsindex mit der Mischungsregel nach Maxwell Garnett für verschiedene Massenanteile des schwarzen Kohlenstoffs bei 550 nm.

Als weitere Möglichkeit einer internen Mischung wird ein Modellpartikel mit einem Kern aus schwarzem Kohlenstoff und einem Mantel aus der schwach absorbierenden Komponente betrachtet (Abbildung 1, links unten). Diese Variante kommt der Realität vermutlich am nächsten, wenn man davon ausgeht, dass organische Substanzen auf den Rußpartikeln kondensieren (*Martins et al., 1998*). Erwähnenswert bei dieser Mischung ist die Tatsache, dass der Mantel einen fokussierenden Effekt hat, der zu einer Erhöhung der Absorption im Vergleich zu einer volumengemittelten internen Mischung führt. Bei einer externen Mischung (Abbildung 1, rechts) werden die optischen Eigenschaften für die beiden Komponenten mit der Mie-Theorie getrennt berechnet und anschließend gemittelt.

Durch die Annahmen über die Mischung der beiden betrachteten Komponenten und den Rußanteil lässt sich demnach ein effektiver Brechungsindex für das betrachtete Partikel berechnen. Dieser Wert bildet dann zusammen mit dem Partikelradius die Eingangsparameter des Mie-Programms. Sofern ein Ensemble von Partikel mit verschiedenen Radien betrachtet wird, sind Mie-Rechnungen für die verschiedenen Partikelgrößen nötig. Sowohl die gewählte Mischungsform als auch der Rußanteil sind dabei für alle Radien gleich, d.h. eine Abhängigkeit der chemischen Zusammensetzung von der Partikelgröße wird dabei vernachlässigt. Die optischen Eigenschaften für die gesamte Verteilung ergeben sich dann durch Wichtung der Einzelpartikeleigenschaften mit der Anzahlgrößenverteilung. Einen Überblick der Eingangsparameter der Mie-Rechnungen für die in Abschnitt 4 dargestellten Modellergebnisse zeigt die Tabelle 2. Der einzige zeitabhängige Eingangsparameter ist dabei die gemessene Anzahlgrößenverteilung, deren Werte in Zwei-Minuten Abständen zur Verfügung stehen. Indem die Mie-Rechnungen nacheinander für diese verschiedenen Verteilungen durchgeführt werden, ergibt sich eine zeitliche Abfolge der berechneten optischen Eigenschaften. Zu beachten ist dabei, dass die gewählte Mischungsform, der Rußanteil und der komplexe Brechungsindex für alle Verteilungen gleich bleibt, also für die Dauer des Experimentes als konstant angenommen wird.

Bezeichnung	Mischung	BC-Anteil	Brechungsindex	Größenverteilung
MG	<i>Maxwell Garnett</i>	2-20%		2-Minuten Werte
CS	Kern-Mantel	2-20%	siehe Text	aus den
EXTERN	extern	2-20%		Messungen

Tabelle 2: Eingangsgrößen der Mie-Rechnungen für die in Abschnitt 4 gezeigten Modellergebnisse

2.2 Berücksichtigung des Feuchtewachstums

Die Tatsache, dass Aerosolpartikel aus Vegetationsfeuern als Wolkenkondensationskerne dienen können, bedeutet, dass die Partikel lösliche Anteile besitzen und mit zunehmender relativen Feuchte durch Aufnahme von Wasserdampf aus der Gasphase anwachsen. Neben der Zunahme des Partikelradius kommt es dabei zu einer Änderung des komplexen Brechungsindex.

Um den Radius des angewachsenen Partikels als Funktion der relativen Feuchte zu berechnen, wird eine Modifikation der Köhler-Gleichung für Partikel aus löslichen und nicht löslichen Anteilen verwendet (*Pruppacher und Klett, 1997*). Bezüglich des Wachstumsverhaltens für das Biomassenaerosol werden dabei die Annahmen aus *Grant et al. (1999)* berücksichtigt, wonach solche Partikel die Wachstumseigenschaften von Ammoniumsulfat und eine Gesamtdichte von 1 g/cm^3 haben. Für den löslichen Massenanteil werden Werte zwischen 10% (*Feingold et al., 2001*) und 30% (*Grant et al., 1999*) angenommen.

Die Bestimmung des veränderten Brechungsindex richtet sich nach der im trockenen Zustand verwendeten Mischungsform. Im Fall einer internen Mischung nach Maxwell Garnett wird ein Volumenmittel aus dem Brechungsindex von Wasser (Daten aus *Fenn et al. (1985)*) und dem Wert für das trockene Partikel bestimmt. Bei dem Kern-Mantel Modell und der externen Mischung ergibt sich der Wert als Volumenmittel aus dem Brechungsindex von Wasser und dem des organischen Kohlenstoffs, da der schwarze Kohlenstoff als hydrophob behandelt wird.

3 Messungen aus den Laborfeuern

Im Rahmen des Projektes EFEU wurden von unseren Projektpartnern in drei Kampagnen kontrollierte Verbrennungsexperimente in einem Verbrennungsofen am Max-Planck Institut für Chemie in Mainz durchgeführt. Im Vordergrund stand dabei eine bessere Charakterisierung der physikalischen und chemischen Eigenschaften der emittierten Partikel. Dazu wurden verschiedene Brennmaterialien – von tropischen und europäischen Hölzern bis hin zu indonesischem und norddeutschem Torf – in einem Unterstand mit offenem Kamin verbrannt. Da frühere Messungen unmittelbar über dem Kamin sehr hohe Fluktuationen der Aerosolkonzentration ergeben hatten, wurden die Emissionen zunächst in einen handelsüblichen Materialcontainer ($V \approx 32,6 \text{ m}^3$) und von dort zu den verschiedenen Messinstrumenten geleitet. In der ersten Messphase wurde dieser Container als Puffervolumen mit konstantem Durchfluss betrieben. Anschließend wurden die Container-Zuleitungen geschlossen, um das Altern der Partikel untersuchen zu können.

Zu den gemessenen Größen zählten u.a. die Konzentration von Kohlendioxid und Kohlenmonoxid, die Informationen über die Art des Verbrennungsprozesses (Verbrennung bei offener Flamme oder Schwelen) liefern. Die Anzahlgrößenverteilung der Partikel, Eingangsgröße für die in Abschnitt 2 beschriebenen Rechnungen, wurde für Partikel mit Radien zwischen 6 und 400 nm mit einem Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) und für große Partikel ($250 \text{ nm} < r < 5 \mu\text{m}$) mit einem Aerodynamic Particle Sizer (APS) gemessen. Informationen zu dem Ruß-Massenanteil – gemittelt über die Dauer der ersten Messphase – sind durch die chemische Analyse möglich. Für den zum Vergleich mit den Rechnungen ausgewählten Fall eines Eichenfeuers im nächsten Abschnitt liegt der Rußanteil nach ersten Schätzungen zwischen 3 und 10% (*Inuma, 2003*).

Die Messungen des Volumenstreuoeffizienten wurden mit einem integrierenden Nephelometer durchgeführt und liegen an drei Wellenlängen (450, 550 und 700 nm) vor. Für

den Absorptionskoeffizienten stehen Messdaten eines Particle Soot Absorption Photometers (PSAP) bei einer Wellenlänge von 565 nm sowie Messwerte eines photoakustischen Spektrometers (PAS) bei 532 nm zur Verfügung. Da die Einfachstreueralbedo ω_0 nicht direkt gemessen werden kann, wurde der zeitliche Verlauf dieser Größe bei 550 nm mit Hilfe des gemessenen Streukoeffizienten und des Absorptionskoeffizienten des PAS abgeschätzt, um diese Größe ebenfalls mit den Ergebnissen der Modellrechnungen vergleichen zu können. Besonders vorteilhaft für den Vergleich ist dabei, dass alle Messungen mit einer hohen zeitlichen Auflösung von zwei Minuten durchgeführt wurden.

Bezüglich des Feuchtewachstums für das im Abschnitt 4 ausgewählte Experiment haben Messungen eines Hygroscopicity Tandem Differential Mobility Analyzer (HTDMA) gezeigt, dass die Partikelradien bei 30 und 85% relativer Feuchte nur geringe Unterschiede aufweisen. Deshalb wurde das Feuchtewachstum bei den Modellrechnungen in dem jetzt folgenden Vergleich nicht berücksichtigt.

4 Erste Ergebnisse

Für einen ersten Vergleich zwischen den in Abschnitt 2 beschriebenen Modellrechnungen und den EFEU-Messungen (Abschnitt 3) wurde ein Experiment aus der zweiten EFEU-Kampagne ausgewählt, bei dem beide Verbrennungsphasen (eine Verbrennung mit offener Flamme und ein Schwelprozess) auftraten. Das Brennmaterial in diesem Fall war Eichenholz und die Auswertungen beschränken sich auf die erste Phase der Messung, in der der Puffercontainer im konstanten Durchflussmodus betrieben wird.

Die Abbildung 2 zeigt das sogenannte Emissionsverhältnis von Kohlenmonoxid (CO)

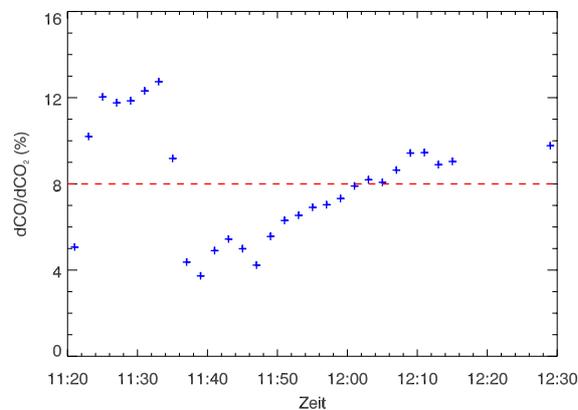


Abbildung 2: Emissionsverhältnis von CO relativ zu CO₂ für das im Folgenden betrachtete Eichenfeuer aus der zweiten EFEU-Kampagne

relativ zu Kohlendioxid (CO₂). Solche Emissionsverhältnisse lassen sich ganz allgemein berechnen, indem man von den im Feuer gemessenen Konzentrationen eines Gases, zum Beispiel CO, und eines Referenzgases, hier CO₂, die jeweilige Umgebungskonzentration subtrahiert und den resultierenden Wert für das betrachtete Gas durch den des Referenzgases dividiert (*Andreae und Merlet, 2001*). In dem betrachteten Fall wurden Umgebungskonzentrationen von 0.4 ppm für Kohlenmonoxid und 400 ppm für Kohlendioxid gewählt (*Parmar, 2003*). Ist das gemessene Emissionsverhältnis von CO relativ zu CO₂ kleiner als 8% handelt es sich um eine Verbrennung bei hohen Temperaturen und offener Flamme, in

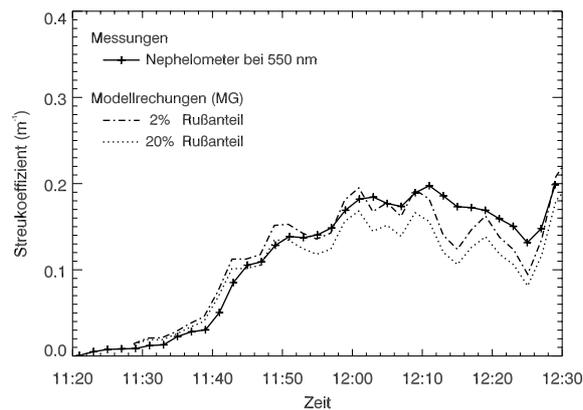


Abbildung 3: Vergleich des Volumenstreuoeffizienten bei 550 nm. Die Modellergebnisse sind für zwei verschiedene Rußmassenanteile gegeben. Zur Berechnung des effektiven Brechungsindex wurde eine interne Mischung nach Maxwell Garnett (MG) gewählt.

der typischerweise der Rußanteil der Partikel sehr hoch ist (Lobert und Warnatz, 1993). Bei Werten von dCO/dCO_2 über 8% handelt es sich um ein schwelendes Feuer und der Rußanteil der Partikel ist wesentlich geringer.

Der zeitliche Verlauf des Emissionsverhältnisses in Abbildung 2 zeigt, dass es zunächst bis etwa 11:36 Uhr eine Schwelphase gab. Die Ursache dafür waren Schwierigkeiten bei der Entzündung des Brennmaterials, die sogar zu einem zwischenzeitlichen Erlöschen des Feuers um 11:29 Uhr führten. Erst nach dem erneuten Entzünden um 11:32 Uhr sank das Emissionsverhältnis stark ab und es kam ab ca. 11:36 Uhr zu einer Verbrennung mit offener Flamme und hohen Temperaturen, der ab 12:02 Uhr eine erneute Schwelphase folgte (Abbildung 2). Dies ist für den Vergleich der optischen Eigenschaften insofern von Bedeutung, da die emittierten Gase und Partikel u.a. auch von der Art des Verbrennungsprozesses abhängig sind (Cofer III et al., 1991). Das beobachtete kurze Aufblodern des Feuers um 12:20 Uhr ist in den Daten leider nicht zu erkennen.

Einen Vergleich zwischen den gemessenen und berechneten optischen Eigenschaften für das ausgewählte Experiment zeigen die Abbildungen 3 bis 5. Dabei wurden, wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, für die jeweiligen Modellrechnungen die Mischungsform, der Rußanteil und der komplexe Brechungsindex für die Dauer des Experimentes als konstant angenommen. Die zeitliche Veränderung der Modellwerte in den Abbildungen 3 bis 5 wird demnach allein durch die Änderungen in der Anzahlgrößenverteilung hervorgerufen.

Im Fall des Streuoeffizienten (Abbildung 3) ist die Übereinstimmung zwischen den Messungen und den berechneten Werten in der heißen Verbrennungsphase bis 12:02 Uhr relativ gut, aber mit Beginn der Schwelphase werden die Messwerte von den Berechnungen mit einem Massenanteil des schwarzen Kohlenstoffs von 20% deutlich unterschätzt. Selbst mit einem für die Schwelphase typischerweise geringeren Rußanteil von 2% sind die Modellwerte zum Teil noch viel zu gering. Betrachtet man alternativ Modellrechnungen mit Kern-Mantel Partikeln, so ergeben sich nur bei einem Rußanteil von 20% etwas geringere Streuoeffizienten im Vergleich zu der Mischung nach Maxwell Garnett. Bei einer externen Mischung verschieben sich die Modellkurven dagegen leicht nach oben.

Der Verlauf des gemessenen Absorptionskoeffizienten in Abbildung 4 zeigt eine deutliche Zunahme der Absorption ab 11:34 Uhr, also mit Beginn der Verbrennung mit offener

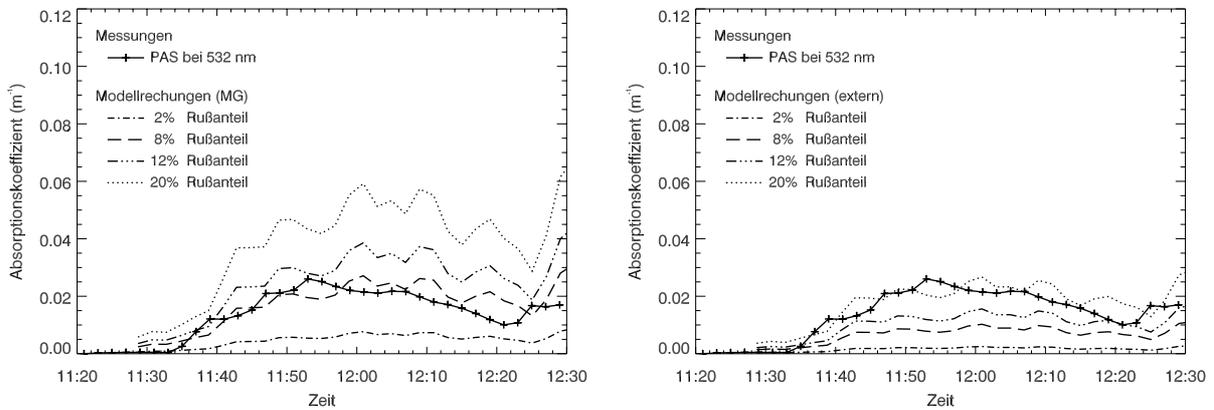


Abbildung 4: Vergleich des Volumenabsorptionskoeffizienten bei 532 nm. Die Modellergebnisse sind für vier verschiedene Rußmassenanteile gegeben. In der linken Abbildung wurde für die Modellrechnungen eine interne Mischung nach Maxwell Garnett angenommen, auf der rechten Seite sind die Ergebnisse für eine externe Mischung dargestellt.

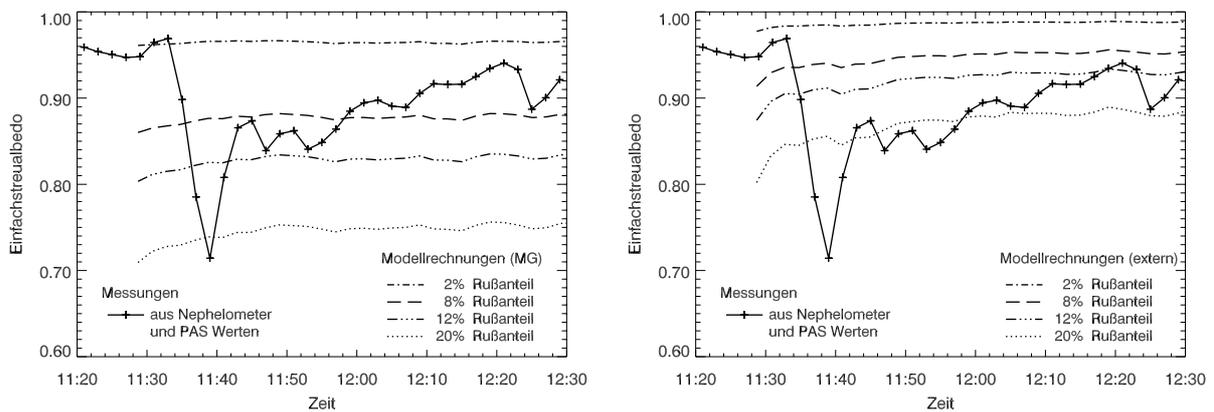


Abbildung 5: Vergleich der aus den Messungen abgeleiteten Einfachstreueralbedo und den Modellergebnissen bei 532 nm. In der linken Abbildung wurde für die Modellrechnungen eine interne Mischung nach Maxwell Garnett angenommen, auf der rechten Seite sind die Ergebnisse für eine externe Mischung dargestellt.

Flamme. Nach dem maximalen Wert von etwa $0,27 \text{ m}^{-1}$ um 11:53 Uhr nehmen die Werte kontinuierlich ab. Der erneute Anstieg gegen Ende des Experimentes um 12:23 Uhr ist vermutlich das Resultat des kurzen Aufloderns. Vergleicht man diese Messungen mit den modellierten Werten für eine interne Mischung, so erhält man die besten Übereinstimmungen in der heißen Verbrennungsphase für Rußanteile zwischen 8 und 12% (Abbildung 4, links). Im Bereich der Schwelphase sind die Ergebnisse für 4 bis 6% passender. Dies gilt auch für Rechnungen der Kern-Mantel Mischung. Im Fall einer externen Mischung (Abbildung 4, rechts) ergeben sich dagegen Absorptionskoeffizienten, die etwa um einen Faktor zwei geringer sind als bei den internen Mischungen. Demzufolge sind für eine gute Übereinstimmung mit den Messungen höhere Rußanteile von etwa 20% erforderlich.

Die Betrachtung der gemessenen und berechneten Einfachstreueralbedo hat den Vorteil, dass diese Größe unabhängig von der Gesamtkonzentration der Partikel ist. D.h., die Einfachstreueralbedo hängt nur noch von den physikalischen und chemischen Eigenschaften der Partikel ab. Der in Abbildung 5 dargestellte zeitliche Verlauf der aus den Messungen abgeleiteten Einfachstreueralbedo ist sehr stark mit der Verbrennungseffizienz korreliert, was aus einem Vergleich mit der Abbildung 2 deutlich wird. Zunächst nimmt die Einfachstreueralbedo hohe Werte um 0,95 an, sinkt dann mit dem Einsetzen der heißen Verbrennungsphase und der daraus resultierenden erhöhten Absorption bis auf 0,7 ab und steigt im weiteren Verlauf wieder auf Werte größer als 0,9 an. Auch hier ist eine Signatur des kurzen Aufloderns durch eine Abnahme der Einfachstreueralbedo ab 12:23 Uhr zu erkennen.

Der Vergleich mit den Mie-Rechnungen für eine Mischung nach Maxwell Garnett (Abbildung 5, links) zeigt, dass man die besten Übereinstimmungen, wie schon beim Absorptionskoeffizienten, in weiten Teilen der heißen Verbrennungsphase für Rußanteile zwischen 8 und 12% erhält. Zur Modellierung der Werte in der Schwelphase bzw. der sehr geringen Werte um 0,7 sind dagegen für die interne Mischung nach Maxwell Garnett Rußanteile von etwa 2 bzw. mehr als 20% nötig. Für das Kern-Mantel-Modell liefern die Rechnungen im Vergleich zu Maxwell Garnett etwas geringere Werte für die Einfachstreueralbedo, was auf die höhere Absorption aufgrund des Focussierungseffektes des Mantels zurückzuführen ist. Dieser Unterschied vergrößert sich mit zunehmendem Rußanteil. Für eine externe Mischung ergeben sich auch für die Einfachstreueralbedo deutliche Unterschiede im Vergleich zu den internen Mischungen. Während ein Rußanteil von 20% bei einer internen Mischung ausreicht, um die niedrigen Werte von 0,7 zu modellieren, erhält man bei einer externen Mischung mit diesem Rußanteil Ergebnisse, die gut zu den Messungen in der heißen Verbrennungsphase passen. Demnach muss der Rußanteil deutlich höher als 20% sein, um auf Werte für die Einfachstreueralbedo von 0,7 zu kommen. Dies würde zu Angaben aus *Lobert und Warnatz* (1993) passen, die Rußanteile von bis zu 40% bei der Verbrennung mit offener Flamme angeben. Bezüglich der erwähnten Schätzung des Rußanteils aus der chemischen Analyse von 3 bis 10% für das betrachtete Experiment lässt sich sagen, dass dies ein Mittelwert über die gesamte Dauer des Experimentes ist, d.h. kurzzeitig sind sehr viel höhere Rußanteile durchaus denkbar. Der Vergleich zeigt außerdem, dass die beobachtete zeitliche Änderung der Einfachstreueralbedo vom Modell nicht reproduziert werden kann. Die Verwendung von größen aufgelösten Daten der chemischen Zusammensetzung erlaubt eine realistischere Beschreibung der optischen Eigenschaften der Partikel. Für zukünftige Studien wäre es zudem wünschenswert, die zeitliche Entwicklung der chemischen Zusammensetzung des Aerosols zu bestimmen.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Diese erste Studie zeigt, dass die Ergebnisse aus den Mie-Rechnungen trotz der vielen Annahmen recht gut mit den Messungen übereinstimmen. Im Fall des betrachteten Eichens Feuers haben die Modellrechnungen gezeigt, dass die Messungen der physikalischen Eigenschaften (Größenverteilung und optische Eigenschaften) unter der Annahme einer internen Mischung mit den Messungen der chemischen Zusammensetzung konsistent sind. Allerdings muss noch untersucht werden inwieweit ähnlich gute Ergebnisse mit anderen Brechungsindizes und realistischen Rußanteilen erzielt werden können und welchen Einfluss das Brennmaterial hat. Sicher ist aber, dass die zeitliche Veränderung der Größenverteilung allein nicht ausreicht, um die zeitliche Entwicklung der optischen Eigenschaften zu erklären. Außerdem sollen auch Rechnungen mit nicht-sphärischen Partikeln durchgeführt werden. Weitere Erkenntnisse über den Einfluss des Feuchtewachstums auf die Streuung werden aus zusätzlichen Nephelometermessungen und deren Modellierung erwartet.

Danksagung

Die Arbeit wird als Teilprojekt in EFEU (07ATF46) im Rahmen des Atmosphärenforschungsprogramms 2000 vom Bundesministerium für Bildung und Forschung finanziell unterstützt.

Unser Dank gilt allen EFEU-Experimentatoren für die Durchführung der Experimente und die Bereitstellung der aufbereiteten Daten. Ein besonderer Dank geht an Kristina Žeromskienė, Otmar Schmid und Yoshi Iinuma für die hilfreichen Informationen zu den Geräten und Messungen.

Literatur

- Andreae, M. und P. Merlet: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochemical Cycles*, **14** (2001), 955.
- Andreae, M. O.: Biomass Burning: Its History, Use, and Distribution and Its Impact on Environmental Quality and Global Climate. In: Levine, J. (Hg.), *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991, 3–21.
- Bohren, C. F. und D. R. Huffman: *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley & Sons, Inc., 1983.
- Chýlek, P., V. Srivastava, R. G. Pinnick und R. Wang: Scattering of electromagnetic waves by composite spherical particles: Experiment and effective medium approximation. *Appl. Opt.*, **27** (1988), 2396–2404.
- Cofer III, W. R., J. S. Levine, E. L. Winstead und B. J. Stocks: Trace Gas and Particulate Emissions from Biomass Burning in Temperate Ecosystems. In: Levine, J. (Hg.), *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991, 203–208.
- Crutzen, P. J. und M. Andreae: Biomass burning in the tropics: Impact on the atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. *Nature*, **250** (1990), 1669–1678.

- Feingold, G., L. A. Remer, J. Ramaprasad und Y. J. Kaufman: Analysis of smoke impact on clouds in Brazilian biomass burning regions: An extension of Twomey's approach. *J. Geophys. Res.*, **106** (2001), 22907–22922.
- Fenn, R., S. Clough, W. Gallery, R. Good, F. Kneizys, J. Mill, L. Rothman, E. Shettle und F. Volz: *Handbook of Geophysics and Space Environment*, Kapitel 18 Optical and infrared properties of the atmosphere. A.S. Jursa, Air Force Geophysics Laboratory Hanscom Air Force Base, Bedford, M.A., 1985, 1–27.
- Grant, K. E., C. C. Chuang, A. S. Grossman und J. E. Penner: Modeling the spectral optical properties of ammonium sulfate and biomass burning aerosols: parameterization of relative humidity effects and model results. *Atmos. Environ.*, **33** (1999), 2603–2620.
- Guyon, P., O. Boucher, B. Graham, J. Beck, O. Mayol-Bracero, G. Roberts, W. Maenhaut, P. Artaxo und M. Andreae: Refractive index of aerosol particles over the Amazon tropical forest during LBA-EUSTACH 1999. *J. Aerosol Sci.*, **34** (2003), 883–907.
- Houghton, J. T., Y. Ding, D. Griggs, M. Noguera, P. J. van der Linden und D. Xiaosu (Hg.): *Climate Change 2001: The Scientific Basis*. Cambridge University Press, UK, 2001.
- Iinuma, Y.: personal communication, 2003.
- Lenoble, J.: The Particulate Matter from Biomass Burning: A Tutorial and Critical Review of Its Radiative Impact. In: Levine, J. (Hg.), *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991, 381–386.
- Lobert, J. M. und J. Warnatz: Emissions from the Combustion Process in Vegetation. In: *Fire in the Environment: The Ecological, Climatic, and Atmospheric Chemical Importance of Vegetation Fires*, John Wiley & Sons Ltd. Chichester, 1993, 15–37.
- Martins, J. V., P. Artaxo, C. Liousse, J. S. Reid, P. Hobbs und Y. Kaufman: Effects of black carbon content, particle size, and mixing on light absorption by aerosols from biomass burning in Brazil. *J. Geophys. Res.*, **103** (1998), 32041–32050.
- Maxwell Garnett, J.: Colours in metal glasses and in metallic films. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, **203** (1904), 385–420.
- Parmar, R. S.: personal communication, 2003.
- Pruppacher, H. R. und J. D. Klett: *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Kluwer Academic Publishers, 1997.
- Ross, J. L., P. V. Hobbs und B. Holben: Radiative characteristics of regional haze dominated by smoke from biomass burning in Brazil: Closure tests and direct radiative forcing. *J. Geophys. Res.*, **103** (1998), 31925–31941.
- Sloane, C. S.: Optical properties of aerosols—Comparison of measurements with model calculations. *Atmos. Environ.*, **17** (1983), 409–416.
- Sutherland, R. A. und R. K. Khanna: Optical properties of organic-based aerosols produced by burning vegetation. *Aerosol Sciences and Technology*, **14** (1991), 331–342.

Toon, O. B., J. B. Pollack und B. N. Khare: The optical constants of several atmospheric aerosol species: Ammonium sulfate, aluminium oxide, and sodium chloride. *J. Geophys. Res.*, **81** (1976), 5733–5748.

Wurzler, S., H. Herrmann, C. Neusüß, F. Stratmann, A. Wiedensohler, M. Wilck, T. Trautmann, M. O. Andreae, G. Helas, J. Trentmann, B. Langmann, H. Graf und C. Textor: Impact of vegetation fires on the composition and circulation of the atmosphere: Introduction of the research project EFEU. *J. Aerosol Sci.*, **32** (2001), 199–200.

Anschrift der Autoren:

Katja Hungershöfer, Institut für Meteorologie, Universität Leipzig, Stephanstr.3, 04103 Leipzig.

PD Dr. Thomas Trautmann, Institut für Methodik der Fernerkundung, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. (DLR), Oberpfaffenhofen, 82234 Wessling

Dr. Jörg Trentmann, Department of Atmospheric Sciences, University of Washington, Seattle, Washington, USA