

# **Partikel aus Flugzeugtriebwerken und ihr Einfluss auf Kondensstreifen, Zirruswolken und Klima (PAZI)**

Forschungsvorhaben im HGF-Strategiefonds  
von DLR, AWI und FZJ in Kooperation mit dem FZK

Endbericht



August 2003



## Kurzfassung

Das Projekt PAZI erforschte in seiner ersten Phase 2000-2003 die Bildung von Ruß und anderen Aerosolen in Triebwerken und in der Atmosphäre durch den Luftverkehr, deren Einfluss auf die Bildung von Eispartikeln in und außerhalb von Kondensstreifen und die Wirkungen dieser Partikel auf die Zusammensetzung der Atmosphäre, auf Zirruswolken und Strahlungshaushalt und damit letztlich auf das Klima. Das Projekt führte zu einem vertieften Verständnis der Physik der Aerosole und Wolkenbildung. Insbesondere lieferte das Projekt: 1. ein mit Messungen überprüfbares Modell der Rußbildung in Triebwerken, 2. Erkenntnisse über Wirksamkeit verschiedener Aerosole auf die Eisbildung, 3. Daten über den Zusammenhang zwischen Aerosolen und Zirren und 4. eine erste Quantifizierung der Änderung von Zirreigenschaften durch Rußpartikel aus Flugzeugen.

Die beteiligten Zentren setzten in PAZI komplementäre Methoden ein: AWI: Bodenlidar, FZK: Aerosolkammer AIDA, FZJ: Einzelpartikelanalyse und DLR: Brennkammer-Prüfstände, instrumentierte Forschungsflugzeuge, Satellitendaten, und Ruß-, Aerosol- und Klimamodelle. Zudem wurde mit europäischen (Uni. Stockholm, DERA Pyestock u.a.) und deutschen Partnern von Hochschulen (Essen), der MPG (Heidelberg, Hamburg) und der Industrie (RR-D, MTU, Lufthansa), teils in europäisch geförderten Projekten zusammengearbeitet.

Die Ergebnisse von PAZI werden in diesem Endbericht zusammenfassend dargestellt und bewertet. Darüberhinaus werden in Ergänzung zu den bereits vorliegenden Statusberichten die Arbeiten im dritten Projektjahr aufgeschlüsselt nach Einzelprojekten im Detail beschrieben. Im Anhang befindet sich eine Liste der aus PAZI resultierenden Veröffentlichungen (Stand August 2003) und die Skizze zum Folgeantrag PAZI-2.

## Herausgeber

Priv.-Doz. Dr. B. Kärcher und Prof. Dr. U. Schumann  
DLR Oberpfaffenhofen, Institut für Physik der Atmosphäre  
D-82234 Weßling  
bernd.kaercher@dlr.de



## Inhaltsverzeichnis

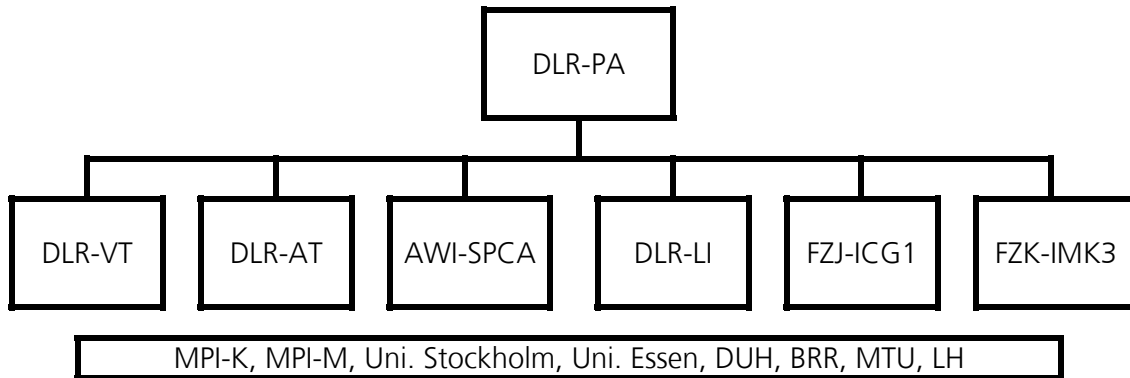
1	Struktur und Organisation.....	7
1.1	Beteiligte Einrichtungen und Partner.....	7
1.2	Projektstruktur und Hauptmeilensteine.....	7
2	Endbericht und Bewertung der Arbeiten .....	9
2.1	Allgemeines .....	9
2.2	Teilprojekt 1.....	9
2.3	Teilprojekt 2.....	13
2.4	Teilprojekt 3.....	17
2.5	Teilprojekt 4.....	22
2.6	Zusammenfassung und Bewertung der wichtigsten Ergebnisse .....	29
2.7	Antrag für ein Folgeprojekt .....	30
3	Berichte aus den Einzelprojekten .....	32
3.1	Rußemissionen und Aerosolvorläufergase.....	32
3.1.1	Rußbildung und Gasphasenchemie in Brennkammern .....	32
3.1.2	Rußemissionen auf realen Flugmissionen .....	42
3.1.3	Spektrale Rußcharakterisierung .....	45
3.2	Eisbildung in der Atmosphäre.....	50
3.2.1	Gefriermessungen in der Aerosol-Wolkenkammer AIDA .....	50
3.2.2	Partikelmessungen in Kondensstreifen und Zirren .....	54
3.2.3	Lidarmessungen von Kondensstreifen, Zirren und H <sub>2</sub> O .....	56
3.2.4	In-situ-Messungen von Einzelpartikelkomposition und H <sub>2</sub> O .....	59
3.3	Aerosol-Zirren-Messungen .....	61
3.3.1	INCA Feldmessungen .....	61
3.3.2	Lidaranalyse von Zirren bei INCA .....	63
3.3.3	Satellitenfernerkundung von Zirren.....	66
3.4	Aerosol-Zirren-Modellierung.....	70
3.4.1	Prozessmodellierung Aerosole und Zirren .....	70
3.4.2	Wolkenauflösende Modellierung .....	73
3.4.3	Globale Modellierung mit ECHAM.....	75
	Anhang 1: Liste der Veröffentlichungen (Stand: August 2003).....	82
	Anhang 2: Skizze des Nachfolgeprojektes PAZI-2 vom 5. Juni 2003 .....	88



# 1 Struktur und Organisation

## 1.1 Beteiligte Einrichtungen und Partner

Das nachfolgende Organigramm gibt eine Übersicht über die in PAZI beteiligten Zentren und assoziierten Partner.



In Projekt PAZI waren seitens des DLR das Institut für Physik der Atmosphäre (PA) (Antragstellung und Koordination) gemeinsam mit der Arbeitsgruppe Lidar (LI) und in enger Abstimmung mit dem Flugbetrieb (FB) und dem Deutschen Fernerkundungsdatenzentrum (DFD) des DLR in Oberpfaffenhofen, das Institut für Verbrennungstechnik (VT, Stuttgart) und das Institut für Antriebstechnik (AT, Köln) beteiligt.

Das Alfred-Wegener-Institut (AWI, Bremerhaven) lieferte Beiträge aus der Sektion für Physik und Chemie der Atmosphäre (SPCA). Das Forschungszentrum Jülich (FZJ) war mit dem Institut für Stratosphärenchemie (ICG1) vertreten, und eine Kooperation bestand mit dem Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK3) des Forschungszentrums Karlsruhe (FZK).

Wissenschaftliche Partner kamen aus den Max-Planck-Instituten für Kernphysik (MPI-K, Heidelberg) und für Meteorologie (MPI-M, Hamburg) und aus den Universitäten Stockholm (und damit dem INCA-Projekt), Essen und der Dalhousie University Halifax (DUH), Kanada. Industriepartner waren Rolls-Royce Deutschland (RR-D), Motoren und Turbinen Union (MTU), die Lufthansa (LH), sowie die Industriepartner des EU-Projekts PartEmis.

## 1.2 Projektstruktur und Hauptmeilensteine

PAZI gliederte sich in 4 Teilprojekte (TP), deren Titel und Koordinatoren in der folgenden Tabelle dargestellt sind. Das umseitige Organigramm zeigt den detaillierten Strukturplan.

<b>Fachliche Koordination:</b>	<b>Prof. Dr. U. Schumann</b>	<b>DLR-PA</b>
<b>Projektleitung:</b>	<b>Priv.-Doz. Dr. B. Kärcher</b>	<b>DLR-PA</b>
<b>Teilprojekte (TP)</b>		
<b>TP1</b>	Messung und Modellierung von Rußpartikeln aus Flugzeugtriebwerken Koordinator: Prof. Dr. M. Aigner, DLR-VT	
<b>TP2</b>	Messung eisbildender Eigenschaften des Aerosols Koordinator: Prof. Dr. U. Schurath, FZK-IMK3	
<b>TP3</b>	Messung des Zusammenhanges zwischen Aerosolen und Zirren Koordinator: Prof. Dr. O. Schrems, AWI-SPCA	
<b>TP4</b>	Modellierung des Zusammenhanges zwischen Aerosolen und Zirren Koordinator: Prof. Dr. R. Sausen, DLR-PA	

PAZI scher	Schumann und Kär- cher
<b>Partikel aus Flugzeugtriebwerken und ihr Einfluss auf Kondensstreifen, Zirruswolken und Klima</b>	

1 <b>Rußemissionen und Aerosolvorläufergase</b>	2 <b>Eisbildung in der Atmosphäre</b>	3 <b>Aerosol-Zirren- Messung</b>	4 <b>Aerosol-Zirren- Modellierung</b>
Aigner	Schurath	Schrems	Sausen
1.1 VT Gerlinger	2.1 FZK Möhler	3.1 PA Busen	4.1 PA Kärcher
Rußbildung und Gasphasenchemie in Brennkammern (mit RR und MTU)	Gefriermessungen in der Aerosol-/Wolkenkammer AIDA	INCA-Feldmessungen (mit EU-INCA-Partnern)	Prozessmodellierung Aerosole und Wolken (mit Uni Essen, Zellner)
1.2 AT Kruse	2.2 PA Busen	3.2 AWI Schrems	4.2 PA Gierens
Rußemissionen auf realen Flugmissionen (mit BRR und MTU)	Partikelmessungen in Kondensstreifen und Zirren (mit MPI-K, Arnold)	Lidaranalyse von Zirren bei INCA	Wolkenauflösende Modellierung
1.3 PA Petzold	2.3 LI Flentje	3.3 PA Wendling	4.3 PA Sausen
Spektrale Rußcharakteri- sierung (mit EU-PartEmis Partnern)	Lidarmessungen von Kondensstreifen, Zirren und H <sub>2</sub> O	Satellitenbeobachtung von Kondensstreifen und Zirren (mit NASA, Minnis)	Globale Modellierung mit ECHAM (mit MPI-M, Feichter)
	2.4 FZJ Borrmann		
	In-situ-Messungen von Einzelpartikel- Komposition und H <sub>2</sub> O		

In den Teilprojekten 1-4 wurden folgende Hauptmeilensteine definiert.

TP 1:

1. Rußmodul zur Ankopplung an Strömungscode
2. Messungen zur Rußcharakterisierung im Labor, im Hochdruckkanal und am Triebwerk

TP 2:

3. Eisexperimente mit Ruß-/Sulfataerosolen in AIDA
4. Feldmesskampagnen für Kondensstreifen, Zirren und H<sub>2</sub>O

TP 3:

5. INCA-Messkampagne Shannon (bzw. Prestwick)
6. Analyse des Nord-/Süd-Kontrastes der Zirrusseigenschaften in den INCA-Messgebieten

TP 4:

7. Parameterisierungen von Zirren und Bedeckungsgrad für ECHAM
8. Erste Quantifizierung der Klimawirksamkeit luftverkehrsbedingter Zirrenänderungen

Eine zusammenfassende Diskussion und Bewertung folgt in Kapitel 2. Bei der Diskussion der einzelnen Teilprojekte können aus Platzgründen nur einige der wichtigsten Ergebnisse aus



PAZI besprochen werden; tatsächlich wurden wesentlich mehr Arbeiten durchgeführt, welche in den Jahresberichten und den im Anhang 1 aufgeführten Publikationen dokumentiert sind.

## **2 Endbericht und Bewertung der Arbeiten**

### *2.1 Allgemeines*

Die zum Projektstart am 1.7.2000 aufgebaute Internetseite von PAZI <http://www.op.dlr.de/pazi/> enthält neben allgemeinen Informationen zum Projekt den Antragstext sowie die Webseiten aller Einzelprojekte. Ein Link zum Projektmanagement führt u.a. auf einen Überblick über stattgefundenen Projekttreffen mit Kurzprotokollen. Die Webseite wurde ständig aktualisiert, dieser Endbericht ist zusammen mit den Statusberichten der ersten beiden Projektjahre ebenfalls abrufbar.

Im dritten Projektjahr wurden alle Hauptmeilensteine erreicht, ebenso fast alle Meilensteine in den Einzelprojekten. Die Ausnahmen hierzu wurden hinreichend begründet; die wenigen noch offenen Punkte werden in der Vorhabensphase von PAZI (1.7. – 31.12.2003) bis zum Start des Folgeprojektes Anfang 2004 abgearbeitet. Der im Projektplan vorgegebenen Finanzierungsrahmen wurde eingehalten.

Ein wichtiges Anliegen von PAZI war die Integration von Drittmittelprojekten der EU und des BMBF. Hierdurch wurden weiterführende Arbeiten möglich (u.a. die vertiefte Auswertung experimenteller Daten), die die Ziele in PAZI in idealer Weise ergänzten.

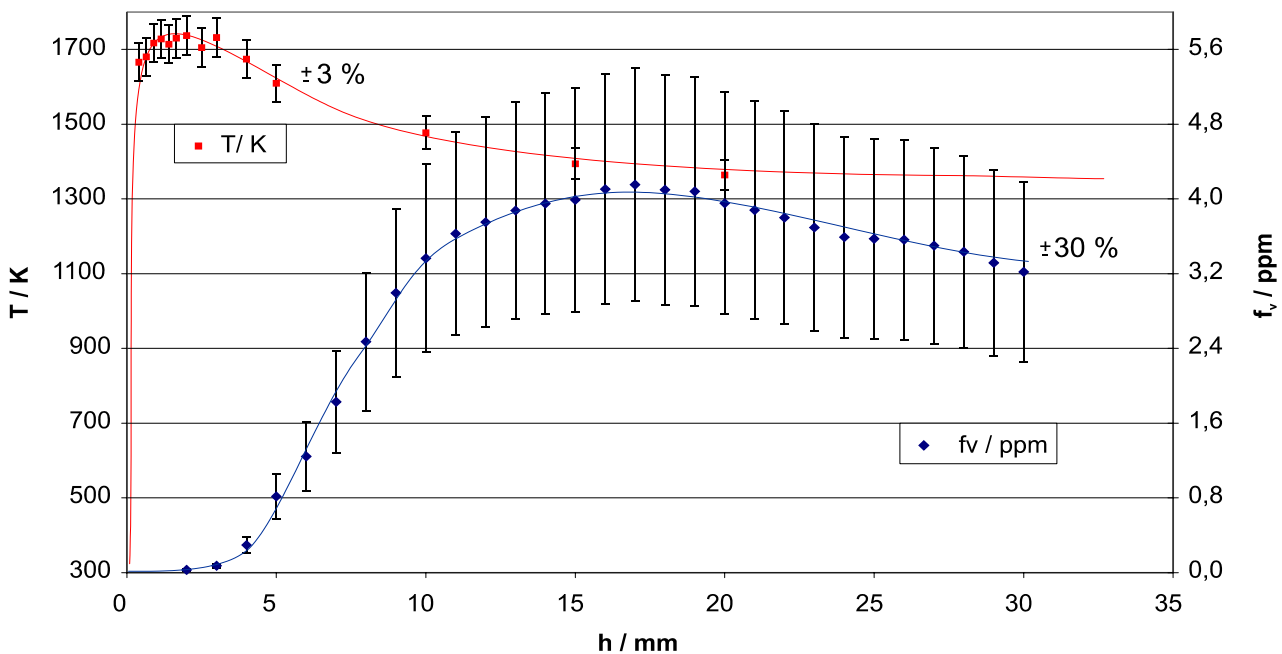
Über Ergebnisse aus PAZI wurde auf einer Vielzahl von Tagungen und Workshops im In- und Ausland von allen beteiligten Gruppen berichtet, zuletzt auf der internationalen Konferenz „Aviation, Atmosphere, and Climate“ (AAC), die am 30.6. – 3.7.2003 in Friedrichshafen stattfand. Die AAC wurde von PA (federführend Prof. R. Sausen) mit Unterstützung der Europäischen Kommission und der Lufthansa organisiert. Die AAC bot allen Gruppen die Gelegenheit, die erzielten Ergebnisse einer breiten Öffentlichkeit aus Wissenschaft und Industrie vorzustellen. Der Projektleiter hielt dort einen Übersichtsvortrag, der über die PAZI-Internetseite abrufbar ist. Mehr Information hierzu in Kapitel 2.6.

### *2.2 Teilprojekt 1*

TP 1 bestand aus drei Einzelprojekten, die sich mit den Rußemissionen aus Flugtriebwerken und ihrer Hochrechnung auf Luftfahrtflotten befassten. Das Ziel des Teilprojekts lag darin, das Abgasaerosol am Brennkammeraustritt zu quantifizieren sowie ein besseres Verständnis und eine bessere Datenbasis bezüglich der Schadstoffbildung unter realistischen Flugtriebwerksbedingungen zu erlangen.

Sowohl EP 1.1 als auch EP 1.3 beschäftigten sich mit der Messung von Schadstoffemissionen aus Flugtriebwerken. Hierzu wurden Messkampagnen an realen Triebwerken und an Brennkammersegmenten durchgeführt. Ein Teil dieser Messungen erfolgte im Rahmen des EU Projekts PartEmis. Dort kam an Stelle einer Turbine ein sogenannter Hot End Simulator zum Einsatz. Darüber hinaus fanden im Berichtszeitraum Brennkammermessungen an einem Rolls-Royce-Triebwerk statt, an denen EP 1.1 und EP 1.2 beteiligt waren. Mit den verfügbaren Messtechniken konnten Gaszusammensetzungen bestimmt und das Aerosol bezüglich der Größenverteilung der Rußpartikel sowie des Mischungs- und Aggregatzustands charakterisiert werden.

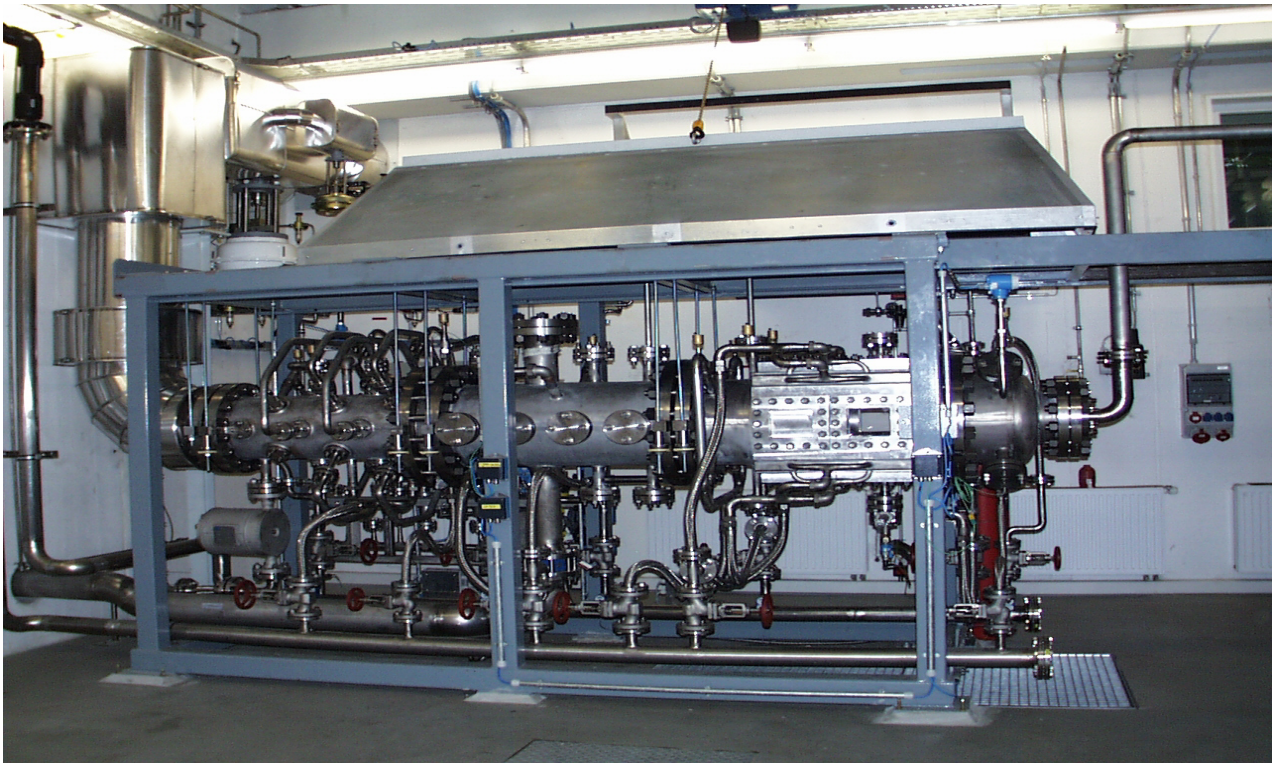
Im EP 1.2 wurden die Abgasdaten einzelner Flugtriebwerke auf Flottenemissionen hochgerechnet. Das hierzu eingesetzte Simulationsprogramm ist um den emittierten Ruß erweitert und die Ergebnisse an die anderen Partner übermittelt worden. Neben den Untersuchungen die reale Triebwerke betreffen, wurden in EP 1.1 zahlreiche Versuche gefahren, die sich detaillierter mit dem Rußbildungsprozeß befassen. Um dennoch nicht von triebwerkstypischen Bedingungen abzuweichen, ist eine Brennkammer im halbtechnischen Maßstab gebaut und am HBK-S untersucht worden. Der Aufbau der Großversuchsanlage HBK-S wurde abgeschlossen. Es hat sich gezeigt, daß an dieser Versuchsanlage triebwerkstypischer Ruß produziert und untersucht werden kann. Darüber hinaus ist an einer einfacheren laminaren Coflame-Versuchseinrichtung der Rußbildungsprozess ohne störende Turbulenzeinflüsse untersucht worden. Inzwischen liegen umfangreiche Daten zu mehreren Brennstoffen und Betriebsbedingungen vor. Die Untersuchungen haben Weiterentwicklungen in komplexen Rußmodellen ermöglicht. Diese Ansätze zur Rußmodellierung gingen auch in die Erstellung von Ruß-Flamelet-Tabellen ein, welche die Grundlage für mehrdimensionale Brennkammersimulationen darstellen.



**Abb. 1:** Messungen zur Rußbildung in einer vorgemischten Ethen/Luft-Flamme bei  $p = 3$  bar und einem Stöchiometrieverhältnis von  $\phi = 2,3$ . Temperatur  $T$  (rot) und Rußmolenbruch  $f_v$  (blau).

Abbildung 1 zeigt beispielhaft Messungen von Temperaturen und Rußvolumenmischungsverhältnissen, die am Coflame Burner in Stuttgart durchgeführt wurden. Dieser Brenner besteht aus einer vorgemischten, rußenden, inneren Flamme (unter Verwendung verschiedener einfacher Kohlenwasserstoffe wie Ethen, Propen, Toluol als Brennstoffe), die von einer stabilisierenden, nicht-rußenden, äußeren Flamme umgeben ist. An diesen Modellsystemen wurden für jeden der genannten Brennstoffe SV-CARS und LII Messungen unter Variation der Betriebsdrücke und der Stöchiometrieverhältnisse durchgeführt. Diese Meßtechniken mußten eigens für diesen Zweck geeignet modifiziert und getestet werden. Es konnte somit eine umfangreiche Datenbasis erstellt werden, die im weiteren zur Verbesserung kinetischer Modelle zur Beschreibung der Rußbildung führten.

Um Rußbildung an brennkammer-nahen Systemen zu studieren, wurde in PAZI der Hochdruckbrennkammerprüfstand HBK-S aufgebaut. Der HBK-S enthält eine subscale Brennkammer, die unter triebwerkstypischen Bedingungen arbeitet (hoher Massendurchsatz, vollturbulente Verbrennung, hohe Drücke, Verwendung von Kerosin); diese ist in Abb. 2 dargestellt.

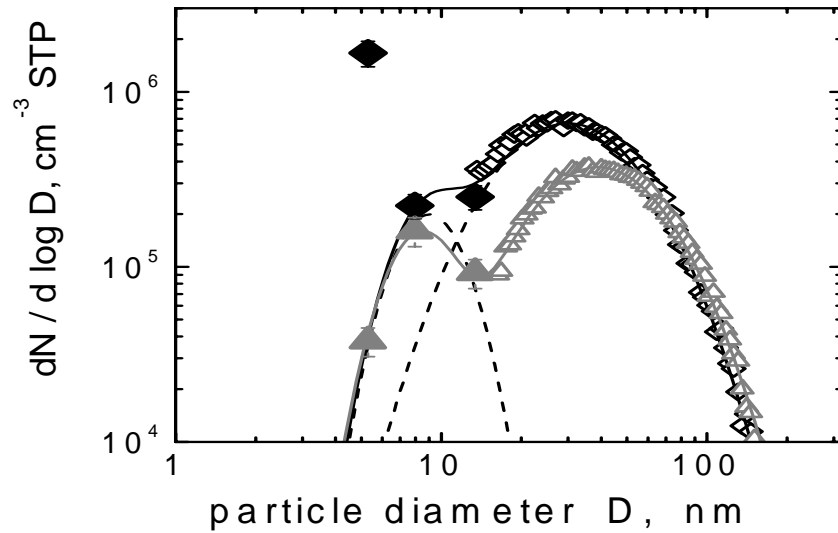


**Abb. 2:** HBK-S Prüfstand in Stuttgart mit den umfangreichen Kühl-, Zu- und Abluftsystemen. Die subskalige Brennkammer kann unter Verwendung von Kerosin als Brennstoff bei Drücken bis 40 bar arbeiten. Realistische Brennkammereintrittstemperaturen werden durch einen elektrischen Lufterhitzer erzeugt.

Am HBK-S wurden Größenverteilungen der erzeugten Rußpartikel unter Flugbedingungen aufgenommen, die sehr ähnlich sind zu denen im Abgas von Flugzeugen in der Atmosphäre. Die Rußpartikel entsprechen somit denen aus realen Triebwerken und sind für Folgestudien geeignet. Geplant sind unter anderem neben systematischen Studien die Messungen der räumlichen Rußverteilung in der PAZI-Brennkammer.

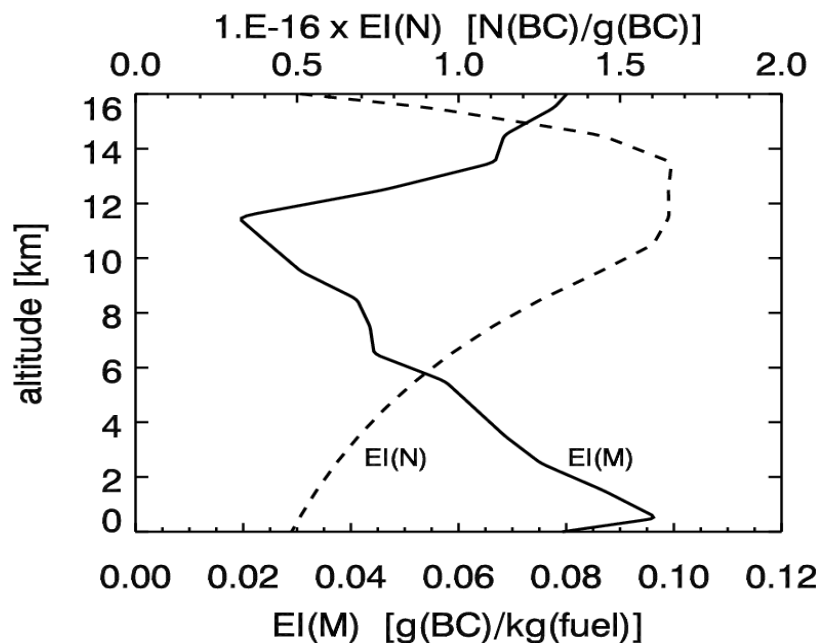
Messungen im Rahmen des EU-Projektes PartEmis erlaubten die Bestimmung konsistenter Datensätze zur Charakterisierung von Rußpartikeln und Aerosolvorläufergasen. Abbildung 3 zeigt die Anzahlgrößenverteilung von Rußpartikeln. Die aus den Atmosphärenmessungen bekannte, schwache Abhängigkeit der Rußemissionen vom Schwefelgehalt des Treibstoffes konnte bestätigt werden. Rußpartikel erscheinen bereits zum Zeitpunkt der Emission als intern gemischte Partikel, die Anteile von Schwefel und organischem Material enthalten. Dies erhöht die Hygroskopizität der Rußpartikel.

Das überraschendste Ergebnis ist aber die Entdeckung einer bislang bei Atmosphärenmessungen nicht-identifizierte Mode von kleinen, elektrisch geladenen Rußpartikeln mit Durchmessern  $< 10$  nm. Diese Mode könnte aus Abbrandprozessen entstehen oder auf ein partielles, verzögertes Wachstum neu gebildeter Rußpartikel deuten. Die Bedeutung dieser ultrafeinen Rußpartikel bei atmosphärischen Prozessen (Eisbildung) ist unklar und muß weiter untersucht werden. Massenspektrometrische Messungen von Chemi-Ionen und kohlenstoffhaltigen Partikeln bestätigen unabhängig die Existenz dieser Teilchen.



**Abb. 3:** Bimodale Rußpartikelgrößenverteilungen. Die schwarzen Rauten sind Meßpunkte für volatile Partikel bestehend aus Schwefelsäure, Wasser und organischem Material. Die Rußmode unterhalb von 10 nm Durchmesser besteht aus elektrisch geladenen Partikeln und wurde erstmalig identifiziert.

In Köln wurde ein Modell zur rechnerischen Abschätzung der Partikelgrößenverteilung und der gesamten Oberfläche des Rußaerosols aus Flugtriebwerken entwickelt. Die wesentlichen Einflußgrößen auf die drei Parameter der Partikelgrößenverteilung (Anzahlkonzentration, Mittelwert, Standardabweichung) sind die Größen Druck und Temperatur am Brennkammereintritt sowie die Ruß-Massenkonzentration am Brennkammeraustritt. Die erstellten Korrelationen für die Rußparameter ermöglichten die näherungsweise Übertragung von einzelnen Brennkammer- und Triebwerksmessungen auf eine Luftverkehrsflotte. Dieser Datensatz wurde im Klimamodell ECHAM verwendet (siehe Abb. 22).



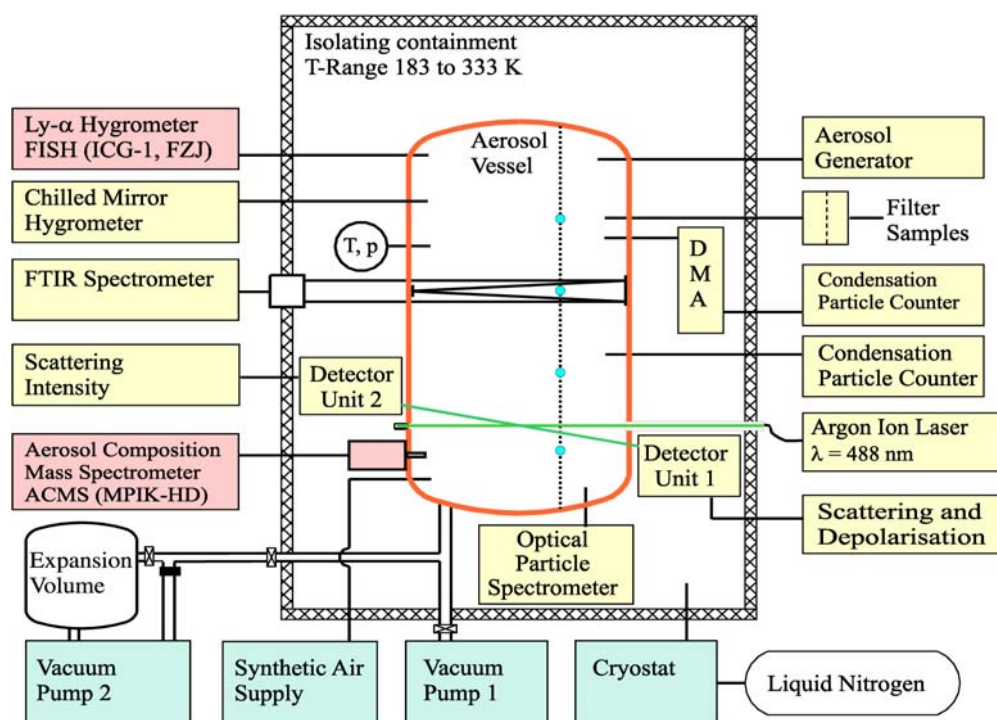
**Abb. 4:** Flottengemittelte Vertikalprofile der Rußemissionen (Anzahl gestrichelte, Masse durchgezogene Linie) aus Flugzeugen in 1992. Die Rechnungen basieren auf neuen, empirischen Korrelationen, die Triebwerksparameter mit der Smoke-Number korrelieren.



Die orts-, höhen- und zeitabhängige Veränderung der Eigenschaften des Aerosols aus Flugzeugtriebwerken wurde mit dem Verfahren berechnet, die Ergebnisse wurden zur weiteren Verwendung an die Partner in EP 4.3 übergeben. Abbildung 4 zeigt die Vertikalprofile der Anzahl- und Massenemissionsindizes der Rußpartikelemissionen basierend auf dem DLR Flugkataster von 1992.

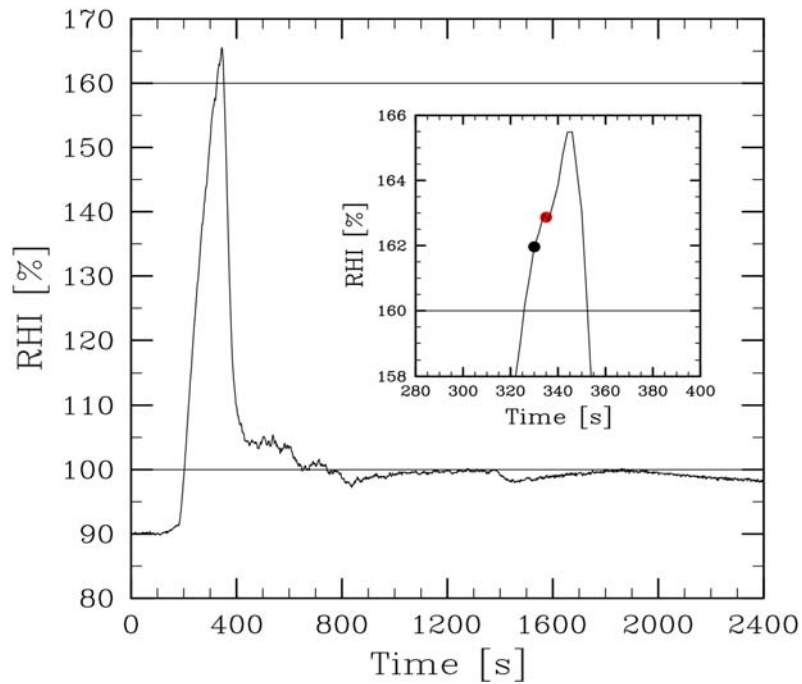
### 2.3 Teilprojekt 2

TP 2 integriert vier Einzelprojekte, die sich mit der Bestimmung der Gefriereigenschaften von Aerosolpartikeln in der Atmosphäre beschäftigen. Hierzu wurden Messungen in der Aerosol-Wolkenkammer AIDA des FZK sowie flugzeug-getragene Messungen mit der Falcon in Kondensstreifen und Zirren durchgeführt. Nicht zuletzt ist der Erfolg der AIDA Messungen auf die hohe Meßgenauigkeit des vom FZJ im Rahmen von EP 2.4 zur Verfügung gestellten  $L_\alpha$ -Hygrometers FISH zurückzuführen. Die Genauigkeit des FISH Instruments wurde in einer PAZI-Meßkampagne im Rahmen EP 2.2 und EP 2.3 bestätigt. Bei den Messungen in der Atmosphäre kamen das Aerosollidar und das Wasserdampflidarsystem zum Einsatz (EP 2.3), aber auch externe Partner trugen mit massenspektrometrischen Messungen zum Erfolg der Kampagnen bei (EP 2.2).



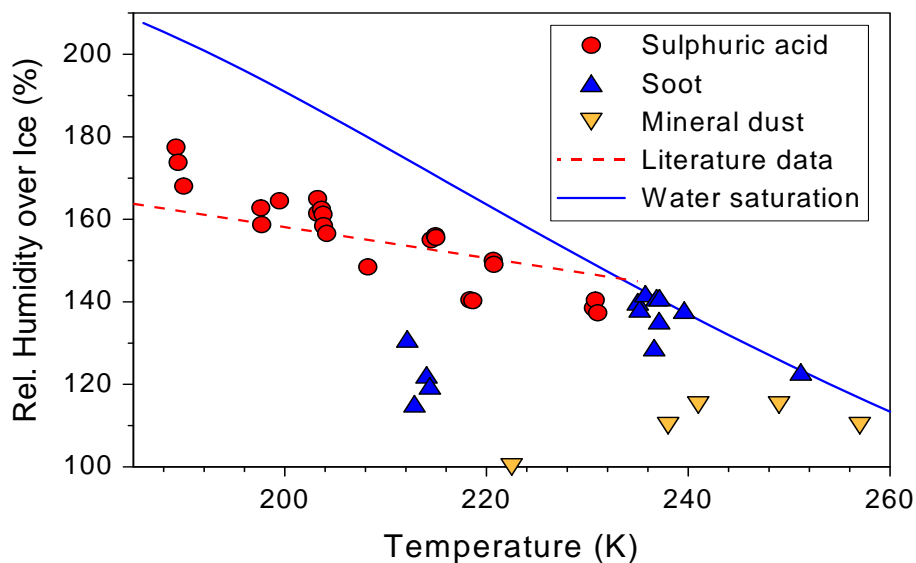
**Abb. 5:** Aerosol-Wolkenkammer AIDA des FZK mit Instrumentierung (Stand 2002).

Die AIDA wurde während PAZI um eine Vielzahl wichtiger Analysegeräte erweitert (EP 2.1), wie in Abb. 5 dargestellt. Ausführliche Studien zur homogenen Eisnukleation wurden in enger Kooperation mit EP 4.1 durch theoretische Interpretationen ergänzt. In der zweiten Projekthälfte wurde mit dem Studium heterogener Eisnukleation begonnen. Das Einzelpartikel-Massenspektrometer SPLAT des FZJ /MPI und Uni Mainz wurde entwickelt (EP 2.4), jedoch zum Zwecke des Flugzeugeinsatzes durch ein von der Firma Aerodyne Inc. entwickeltes Aerosol-Massenspektrometer (AMS) ersetzt. Es weist eine Reihe wichtiger Vorzüge auf, insbesondere konnten damit quantitative Analysen der bei hohen Temperaturen flüchtigen Partikelzusammensetzung durchgeführt und Größenverteilungen von 30 nm bis 2  $\mu$ m für einzelne Komponenten gemessen werden.



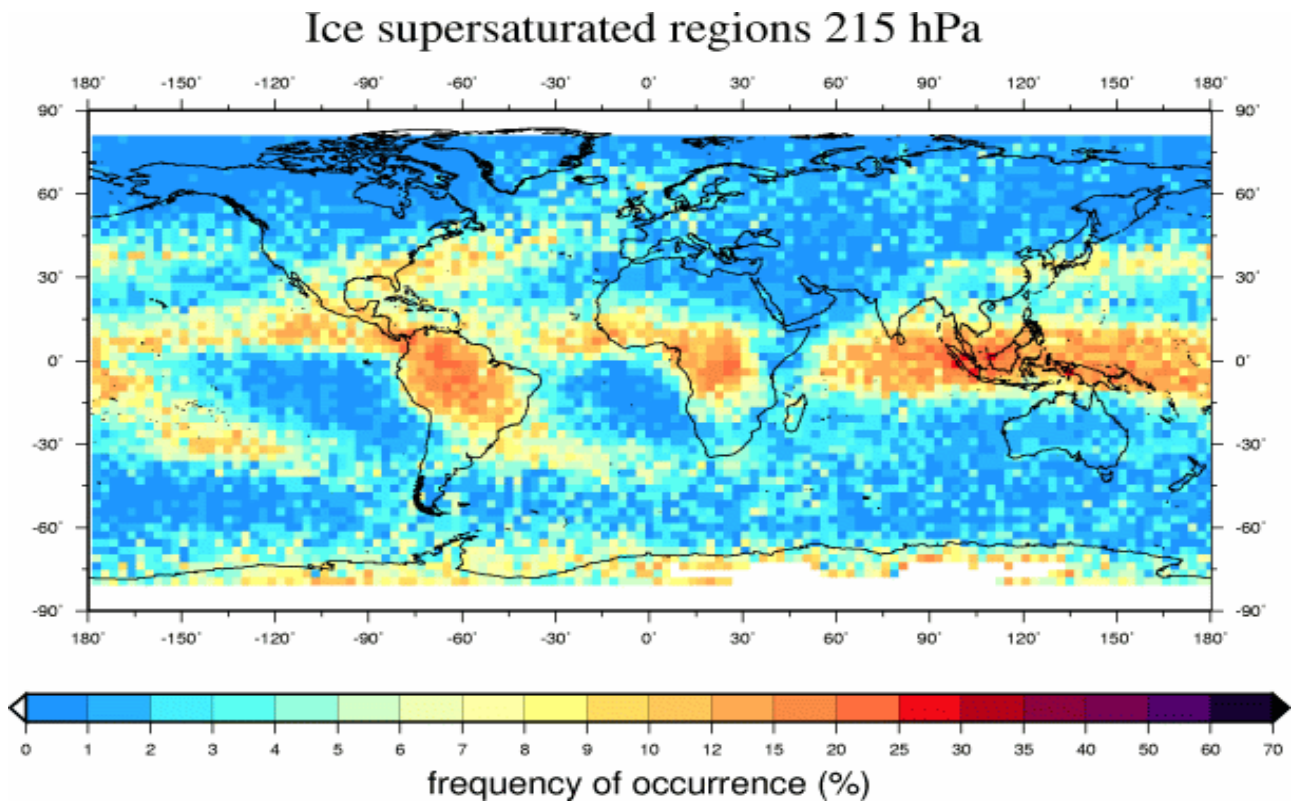
**Abb. 6:** Numerische Analyse eines AIDA Gefrierexperimentes mit Schwefelsäureaerosol. Zur Anwendung kam das in PAZI weiterentwickelte Prozeßmodell APSC des DLR. Der schwarze (rote) Punkt zeigt den beobachteten (gemessenen) Einsatzpunkt des Gefrierens an.

Abbildung 6 zeigt das Ergebnis eines Vergleiches zwischen AIDA Messung und numerischer Rechnung. Gezeigt ist die zeitliche Entwicklung der relativen Feuchte über Eis in einem homogenen Gefrierexperiment. Der von anderen Labormessungen vorausgesagte Eiseinsatzpunkt (horizontale Linie) konnte in guter Näherung verifiziert werden, jedoch spielen Nichtgleichgewichtseffekte bei den verwendeten, hohen Kühlraten eine wichtige Rolle bei der Interpretation der Messungen. Gleiches gilt für den Austausch von Wasserdampf zwischen Kammerwänden und Kammervolumen. Insgesamt konnte durch eine Serie von detaillierten Vergleichen bei unterschiedlichen thermodynamischen Bedingungen festgestellt werden, daß die Zirrusbildung durch homogenes Gefrieren mit den zur Verfügung stehenden theoretisch-numerischen Methoden hinreichend gut prognostiziert werden kann, vorausgesetzt, Kühlraten, Temperaturen und relative Feuchten sind hinreichend genau bekannt.



**Abb. 7:** Zusammenschau ausgewählter, in der AIDA durchgeführter Gefriermessungen (Gefrierfeuchten über Eis) mit Schwefelsäureaerosol (rot), Rußaerosol (blau) und Staubproben (gelb).

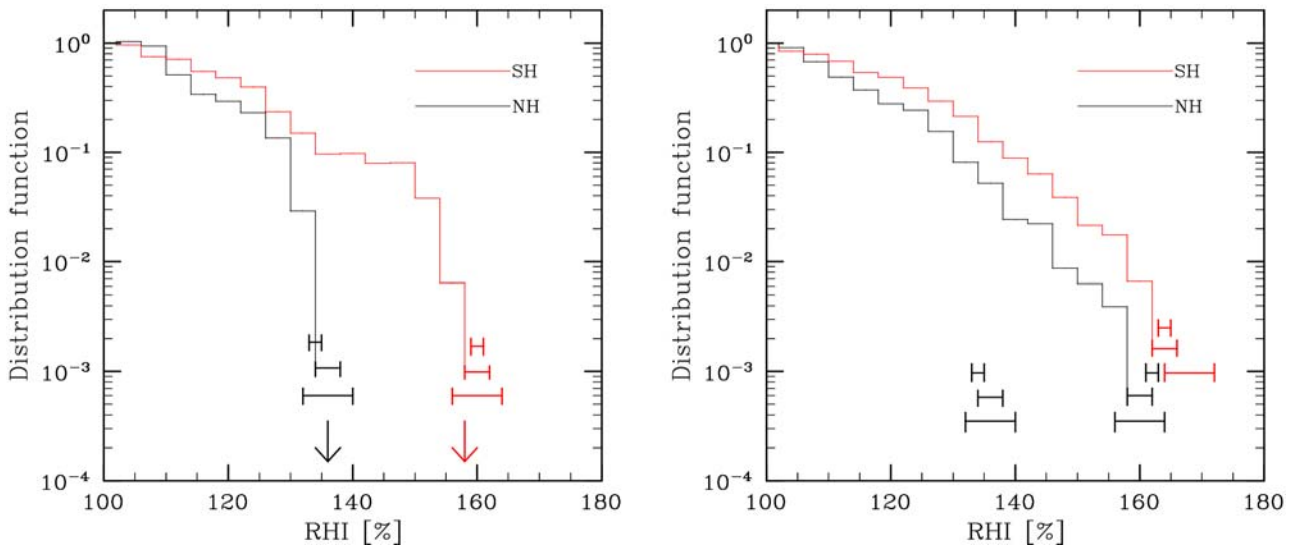
Abbildung 7 fasst einige der in der AIDA gemessenen relativen Gefrierfeuchten zusammen und legt nahe, daß heterogene Eiskerne wie Ruß und Staub die Nukleation von Eis bei niedrigeren relativen Feuchten (<145%) als das allgegenwärtige unterkühlte Schwefelsäureaerosol auslösen können. Die Auswertung der heterogenen Gefrierexperimente ist aber noch nicht abgeschlossen und es sind weitere Messungen nötig, um bestehende Unterschiede zu den Experimenten anderer Gruppen zu verstehen.



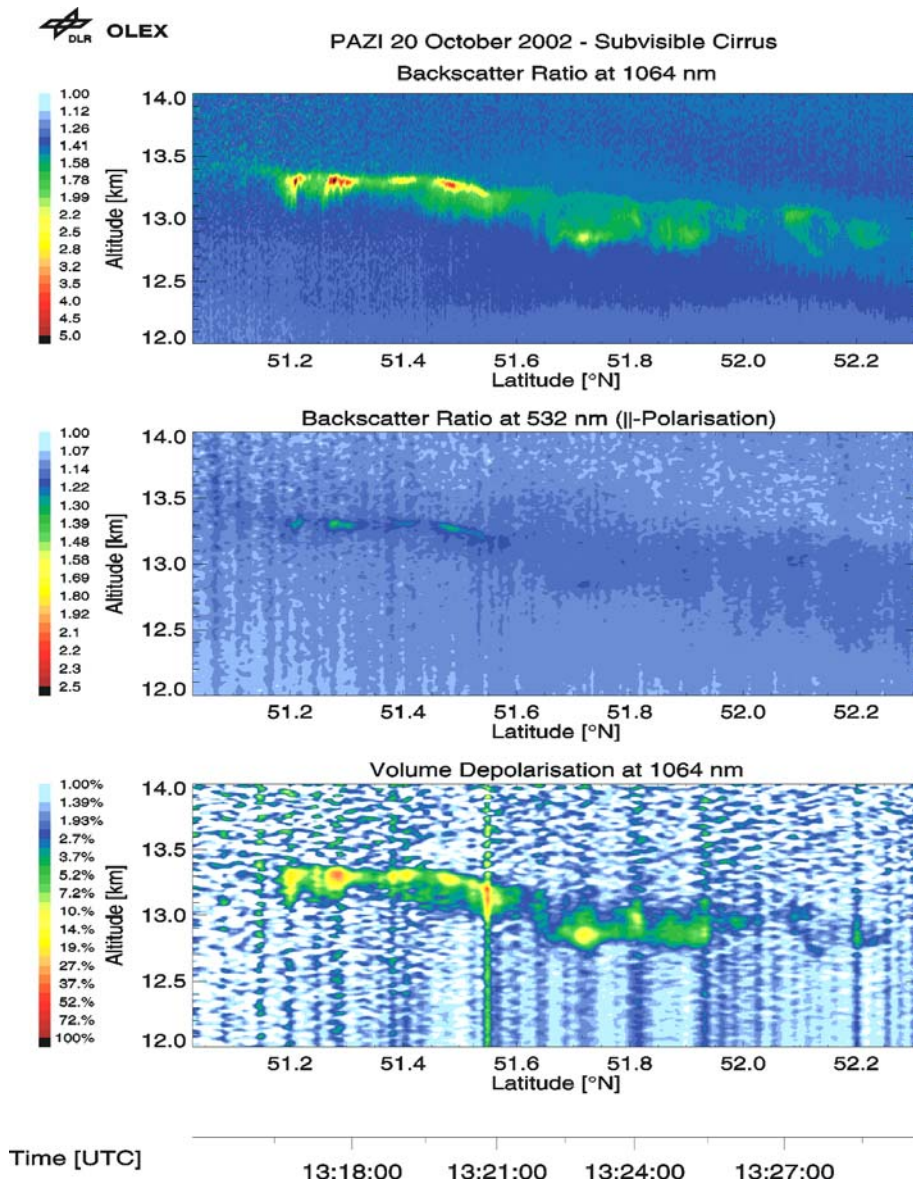
**Abb. 8:** Auftretshäufigkeit eisübersättigter Regionen im Bereich der Tropopause, abgeleitet aus Daten des Microwave Limb Sounder. Diese vermitteln erstmals ein globales Bild dieses lange unterschätzten Phänomens. Das Bild zeigt exemplarisch Messungen im Sommer.

Es stellte sich die Frage, ob Eisübersättigung in der oberen Troposphäre ein lokales, intermittentes Phänomen darstellt, oder global und zeitlich ausgedehnt auftritt. Neben den MOZAIC Daten wurden zur Beantwortung dieser Frage auch satelliten-gestützte Messungen mit dem Microwave Limb Sounder ausgewertet. Diese sind in Abb. 8 im Druckniveau 215 hPa für das Sommerhalbjahr dargestellt. Neben den tropischen und (süd-)polaren Maxima wird deutlich, daß auch in den mittleren Breiten entlang der typischen Zyklonenbahnen häufig Eisübersättigung detektiert wird.

Die flugzeug-getragenen Messungen während INCA zeigen ebenfalls eine hohe Auftretswahrscheinlichkeit für Eisübersättigung, sowohl außerhalb als auch innerhalb von Zirren. Messungen von Wasserdampf oder relativer Feuchte in Gegenwart von Wolkenpartikeln sind meßtechnisch äußerst anspruchsvoll, weswegen bis heute nur eine relativ kleine Datenbasis zu Vergleichszwecken zur Verfügung steht. Abbildung 9 zeigt die Resultate der Auswertung der INCA Daten, getrennt für die Messungen in Prestwick (NH) und Punta Arenas (SH). Die Verteilungsfunktionen innerhalb und außerhalb von Zirren (< 235 K) sind einheitlich normiert dargestellt. Die Daten außerhalb der Zirruswolken wurden sorgfältig mittels Eispartikelmessungen aus dem gesamten Datensatz isoliert.



**Abb. 9:** Häufigkeitsverteilungen der während INCA bestimmten relativen Feuchten über Eis außerhalb (links) und innerhalb (rechts) von Zirruswolken für Temperaturen < 235 K.



**Abb. 10:** Lidarmessung eines sehr dünnen Zirrus an der Tropopause in mittleren Breiten.



Die Steigungen der Verteilungen außerhalb von Zirren werden durch Transporteigenschaften der Luft (insbesondere durch Vertikalbewegungen) und durch mikrophysikalische Prozesse an Eiskristallen bestimmt. Die scharfen Obergrenzen der Verteilungen sind ein Maß für die relativen Feuchte über Eis, bei denen Gefrieren (also Zirrusbildung) einsetzt. Innerhalb von Zirren stellt die Obergrenze die maximal mögliche relative Feuchte dar, die in Gegenwart der existierenden Eispartikel im Zirrus durch vertikalen Auftrieb erreicht werden kann.

Bei den beiden roten Verteilungen fällt auf, daß die Obergrenzen außerhalb und innerhalb der Zirren nahe beisammen (~155-160%) liegen; dies läßt sich konsistent mit homogenen Gefrierprozessen erklären. Bei den beiden schwarzen Verteilungen setzt das Gefrieren jedoch bereits bei 130% ein, vermutlich aufgrund der Gegenwart einiger effektiver Eiskerne. Deren Anzahl ist jedoch offenbar so gering, daß diese bei den vorherrschenden Kühlraten und Temperaturen den homogenen Pfad nicht unterbinden können.

Während der PAZI Nachlaufvlüge konnte auch eine interessante Lidarmessung einer optisch sehr dünnen Eiswolke durchgeführt werden. Abbildung 10 zeigt die Rückstreuverhältnisse bei zwei Wellenlängen und die Volumendepolarisation eines unsichtbaren Zirrus an der Tropopause in etwa 13 km Höhe bei 52°N / 10°E. Die Wolke ist vertikal nur wenig ausgedehnt und im 532 nm Kanal fast nicht zu erkennen. Das Wasserdampflidar zeigt ein Mischungsverhältnis von etwa 15-20 ppmv an, aus den Lidardaten lassen sich typische Partikelgrößen von etwa 2-4 µm ableiten.

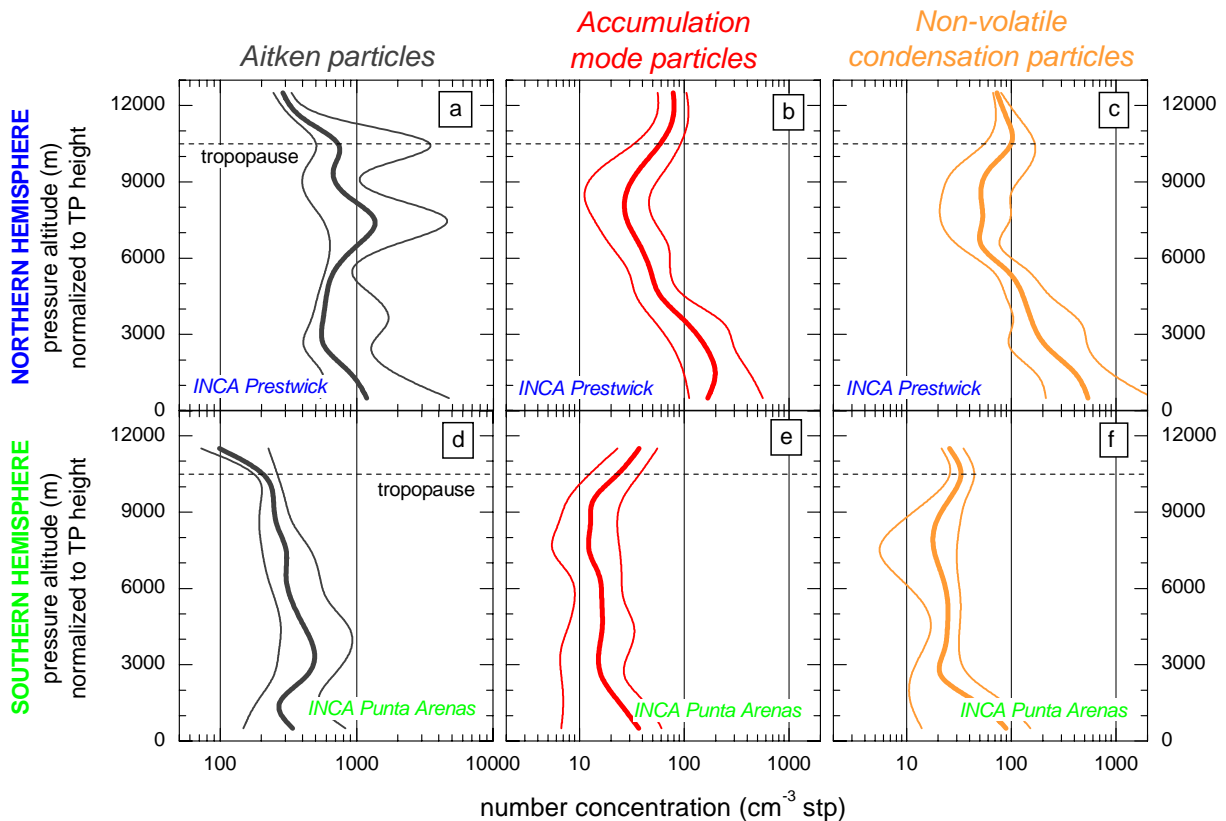
Interessanterweise zeigt dieser Zirrus in mittleren Breiten ähnliche Eigenschaften auf, wie die in den Tropen an der Tropopause vorherrschenden, extrem dünnen Zirren. Jedoch bleibt auch bei dem in Abb. 10 gezeigten Fall der Bildungsmechanismus unklar; vermutlich spielen effektive Eiskerne eine Rolle, es kann aber nicht ausgeschlossen werden, daß es sich hierbei um einen Überrest eines verdampften Zirrus handelt.

## 2.4 Teilprojekt 3

TP 3 setzt sich aus drei Einzelprojekten zusammen mit der Aufgabe, den Zusammenhang zwischen Aerosolen und Eigenschaften von Zirren in Luftmassen in sehr geringer und sehr großer Aerosolbelastung durch Messungen, insbesondere in mittleren Breiten auf der Süd- und Nordhemisphäre unter sonst ähnlichen Bedingungen, zu bestimmen. Dabei kamen satellitengetragene, flugzeuggetragene und bodengebundene Meßinstrumente zum Einsatz.

Im Rahmen des EU-Projektes INCA waren im ersten Projektjahr von PAZI in der Südhemisphäre (Punta Arenas, Chile) und der Nordhemisphäre (Prestwick, Schottland) Feldmeßkampagnen durchgeführt worden. Das Projekt INCA konnte im Februar 2002 mit einem zusammenfassenden Abschlußbericht beendet werden.

Bei den Flugzeugmessungen an Bord der Falcon (EP 3.1) wurden insbesondere Aerosol- und chemische Eigenschaften untersucht. Im Rahmen des EP 3.2 wurden mit dem bodengebundenen Lidar (MARL) in Punta Arenas, in Prestwick und auf Polarstern auf der Fahrt von Punta Arenas nach Bremerhaven (LIMPIDO-Kampagne) Messungen von Zirren durchgeführt. Eine weitere Messkampagne in den Tropen (Merida, Venezuela) wurde zusätzlich zu den INCA-Aktivitäten durchgeführt. In EP 3.3 wurde im Rahmen eines inzwischen abgeschlossenen BMBF-Projektes untersucht, inwieweit der Flugverkehr über die Kondensstreifen-Bewölkung hinaus die Zirrus-Bewölkung über Europa beeinflusst.

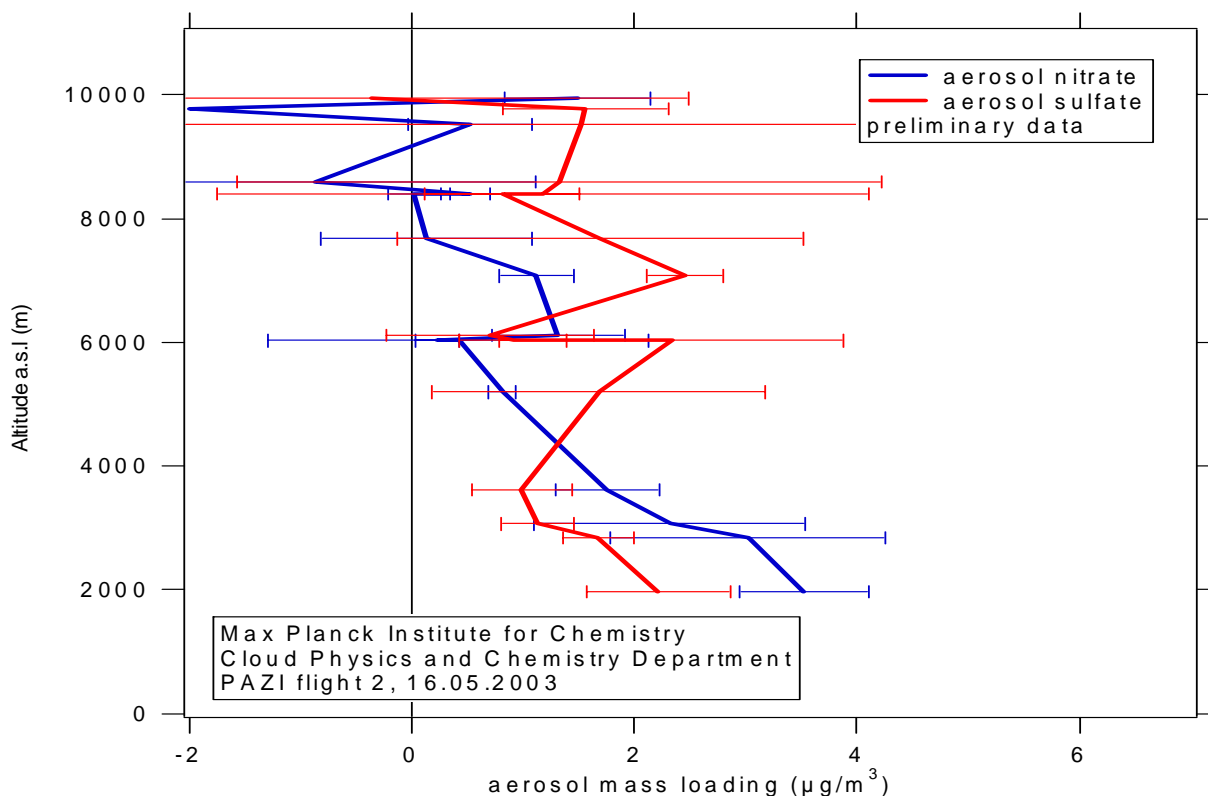


**Abb. 11:** Kampagnen-gemittelte Vertikalprofile von Aerosolpartikelkonzentrationen während INCA.

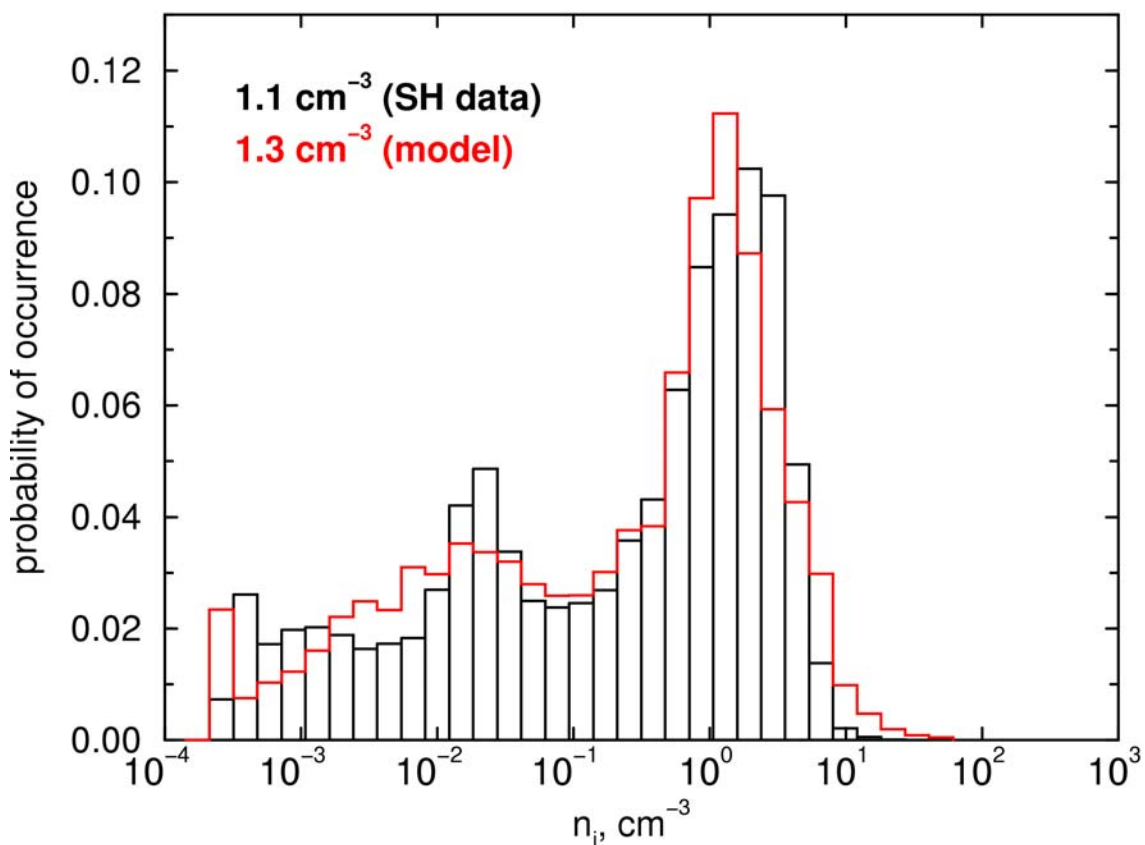
Abbildung 11 zeigt die Anzahlkonzentrationen aller Aerosolpartikel (links), der Akkumulationsmode (mitte) und der nicht-volatilen Fraktion (rechts) in Vertikalprofilen aus INCA Daten. Die dicken Kurven repräsentieren die Mediane, die dünnen Kurven verdeutlichen die Variabilität dieser Größen. Es fällt hierbei auf, daß etwa 10-30% aller Partikel nicht verdampfbare Komponenten enthalten, die als potentielle effektive Eiskerne wirken können. Interessanterweise nimmt die Konzentration dieser Partikel im Bereich der Tropopause wieder zu, was auf komplexe Transporteigenschaften schließen läßt.

Neben der Entwicklung des Einzelpartikelmassenspektrometers SPLAT wurden Aerosoleigenschaften auch mit einer modifizierten Version des Aerosol-Massenspektrometers AMS von Aerodyne, Inc., in situ gemessen. Dieses Gerät erlaubt die quantitative Analyse der bei hohen Temperaturen flüchtigen Partikelzusammensetzung sowie Größenverteilungen von 30 nm bis 2  $\mu\text{m}$  für einzelne chemische Komponenten.

In Abb. 12 sind während PAZI gemessene Vertikalprofile von partikulärem Nitrat und Sulfat gezeigt (vorläufige Auswertung). In diesem Fall enthielten die Partikel der Akkumulationsmode in der oberen Troposphäre relativ wenig Salpetersäure, jedoch stellt die Schwefelsäure (oder andere Formen des Sulfats) eine wichtige Komponente des Aerosols dar.



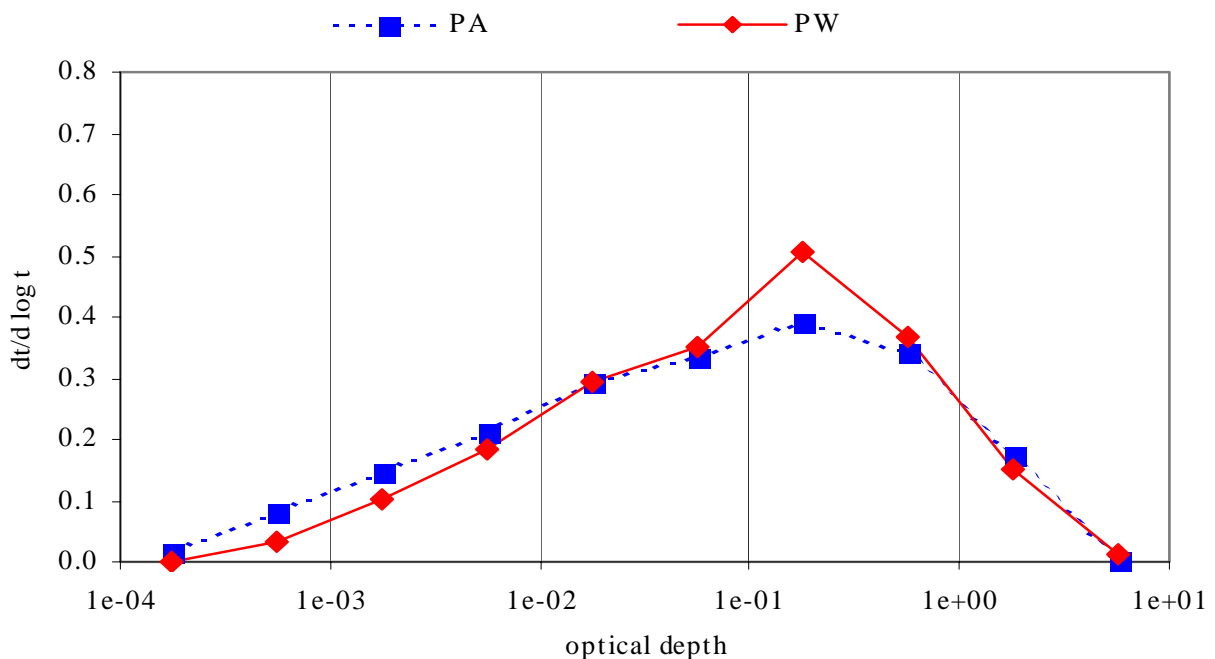
**Abb. 12:** Mit dem Aerosolmassenspektrometer detektierte, chemische Aerosolzusammensetzung im Vertikalprofil während einer PAZI Kampagne.



**Abb. 13:** Mit dem counterflow virtual impactor bestimmte Häufigkeitsverteilung der Anzahlkonzentrationen von Eiskristallen über Punta Arenas (schwarz) verglichen mit einer Modellinterpretation (rot).

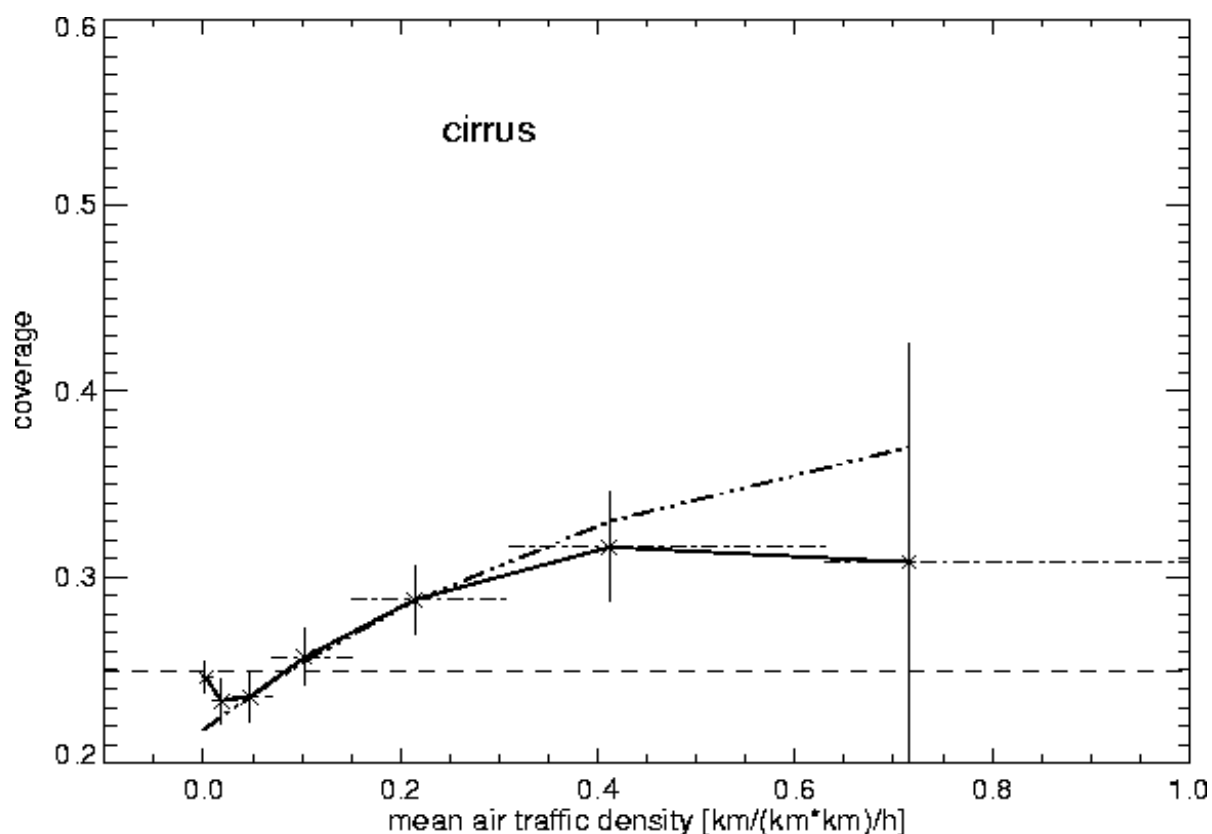
Der counterflow virtual impactor (CVI) erlaubte die akkurate Bestimmung der totalen Eiskristallkonzentrationen in Zirren während INCA. Abbildung 13 zeigt die gefundene Häufigkeitsverteilung dieser Größe (schwarz), wie sie in Punta Arenas gemessen wurden. Das rote Histogramm ist das Ergebnis einer Modellanalyse. Das Maximum bei hohen Konzentrationen im Bereich  $1-10 \text{ cm}^{-3}$  entsteht durch eine Kombination von homogenen Gefrierprozessen und schnellen Kühlraten, welche durch kleinskalige Temperaturfluktuationen generiert werden. Die breite Verteilung hin zu niedrigen Konzentrationen wird durch die Variabilität der Kühlraten, aber auch durch Sedimentation, dynamische Verdünnung von Luftpaketen und - im Falle der Prestwick-Daten, die ähnliche Eigenschaften aufweisen – durch heterogene Gefrierprozesse bestimmt.

Eine Untersuchung der mit der Falcon während INCA gemessenen Vertikalwinde ergab, daß die die Eisnukleation kontrollierenden Schwerewellen typische Perioden von 20 min und Temperaturamplituden bis zu etwa 2 K aufwiesen. Einer rohen Abschätzung nach entspricht dies horizontalen Längenskalen von mehreren 10 km. Daraus ergeben sich mittlere Vertikalgeschwindigkeiten im Bereich 25-35 cm/s, typisch für mesoskalige Fluktuationen. Es ist wichtig anzumerken, daß Wettervorhersage- oder Klimamodelle diese mesoskalige Variabilität nicht enthalten. Typische mittlere synoptische Vertikalwindgeschwindigkeiten aus solchen Modellen liegen bei 1 cm/s.



**Abb. 14:** Mit dem Mobilen Aerosol Raman Lidar während INCA bestimmte Häufigkeitsverteilungen der optischen Tiefe von Zirren. Zirren mit optischen Tiefen  $< 0.02$  werden als unsichtbar klassifiziert.

Messungen von Zirren während INCA wurden auch mit dem Mobilen Aerosol Raman Lidar durchgeführt. Das Gerät reagiert sehr sensitiv auf die Gegenwart optisch sehr dünner Zirren und kann selbst Eiswolken mit optischen Tiefen von wenigen 0.0001 im sichtbaren nachweisen. Abbildung 14 zeigt die Häufigkeitsverteilung der optischen Tiefen von Zirren an. Es fällt auf, daß selbst in mittleren Breiten die unsichtbaren Zirren (optische Tiefe  $< 0.02$ ) etwa 1/3 der Messungen ausmachen. Dabei sind die Unterschiede zwischen den beiden Meßorten auf der Nord- und Südhemisphäre gering. Im Bereich der Flugniveaus ist diese Wolkenklasse demnach relativ häufig vertreten. Eine theoretische Studie zeigte, daß unsichtbare Zirren besonders sensitiv auf Änderungen der Eigenschaften heterogener Eiskerne reagieren.



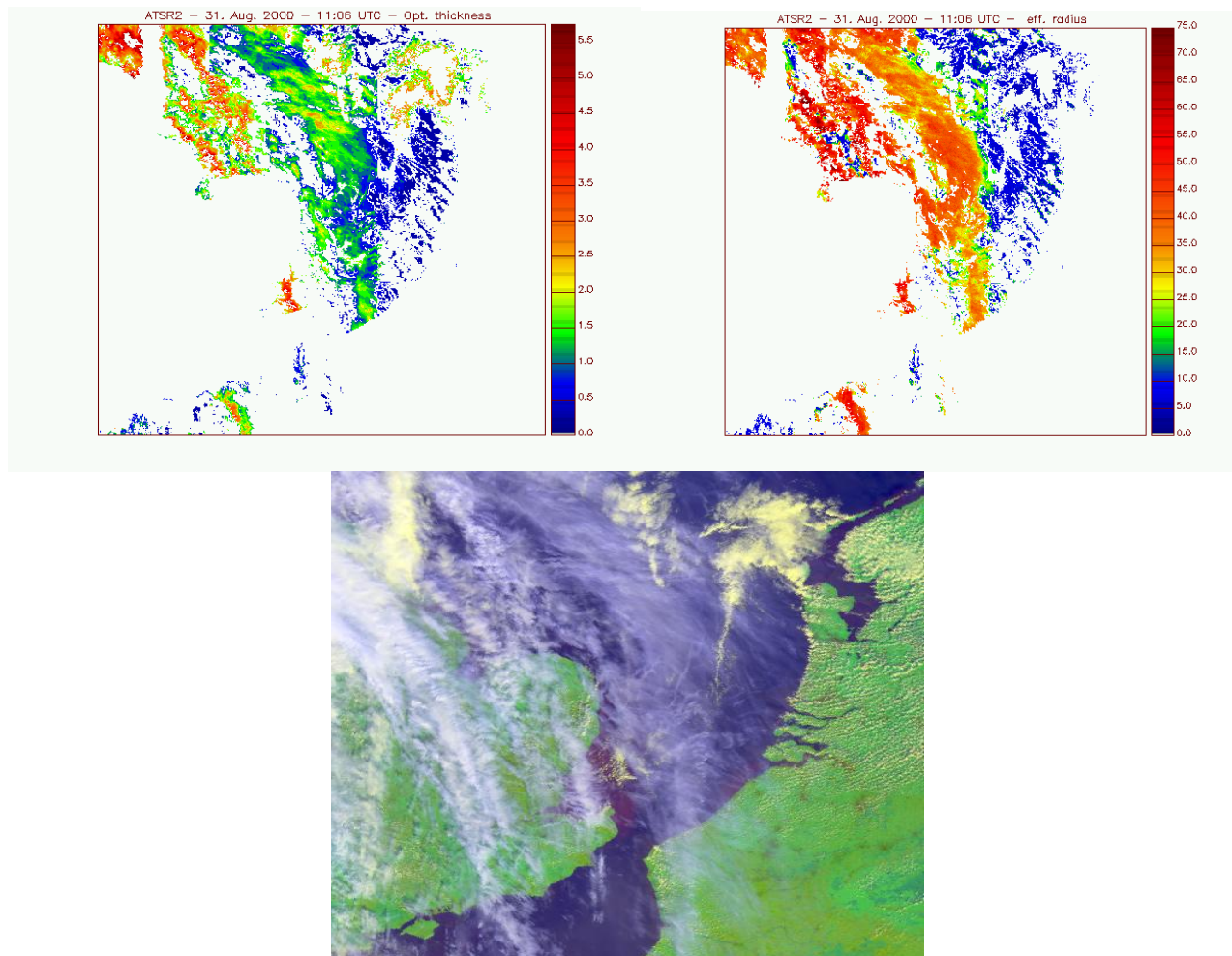
**Abb. 15:** Korrelation von Zirrusbedeckungsgrad und der Häufigkeit der Flugbewegungen über einem Teilgebiet in Europa, basierend auf METEOSAT und EUROCONTROL Daten. Ein ähnliches Ergebnis liegt auch für optisch dünne Zirren vor.

Der Bedeckungsgrad von Zirren über Europa wurde mit Hilfe von METEOSAT Daten bestimmt und mit den aktuellen Flugbewegungen korreliert, welche aus EUROCONTROL Daten gewonnen wurden. Die gefundene Korrelation ist in Abb. 15 dargestellt, ein vergleichbares Ergebnis existiert für die Klasse der dünnen Zirren. Es besteht ein linearer Zusammenhang zwischen Bedeckungsgrad und der Häufigkeit der Flugbewegungen, welche bei starker Verkehrsdichte in eine Sättigung übergeht. Dort ist die statistische Unsicherheit allerdings groß, da nur wenige Fälle in die Analyse eingehen. Ohne Flugverkehr findet man Werte für den Bedeckungsgrad von ca 20%, nahe dem typischen Mittelwert für diese Region.

Hätte man keine solche Korrelation gefunden, wäre die Zirrusbewölkung überwiegend von anderen (meteorologischen) Einflußgrößen kontrolliert. Die Existenz einer solchen Korrelation legt also einen Einfluß des Luftverkehrs auf den Zirrusbedeckungsgrad nahe. Eine mögliche Interpretation ist, daß die zusätzliche, durch den Luftverkehr hervorgerufene Bewölkung durch persistente Kondensstreifen hervorgerufen wird, die durch Windscherung horizontal verbreitert werden. Mögliche indirekte Einflüsse durch Rußpartikel aus Flugzeugtriebwerken oder natürliche Zirrenbildung kann aufgrund dieser Satellitenanalysen aber nicht ausgeschlossen werden.

In PAZI wurden auch verbesserte Verfahren zum Retrieval von Zirrusparametern bei der Gegenwart tieferliegender Wasserwolken und aus Reflektanzen des ATSR-2 Sensors über Wasser entwickelt. Abbildung 16 zeigt ein exemplarisches Beispiel einer ATSR-2 Auswertung über

der Nordsee, bei dem optische Tiefe und effektiver Eiskristallradius eines Frontalzirrus aus den Kanälen 0.87  $\mu\text{m}$  und 1.6  $\mu\text{m}$  abgeleitet wurden.



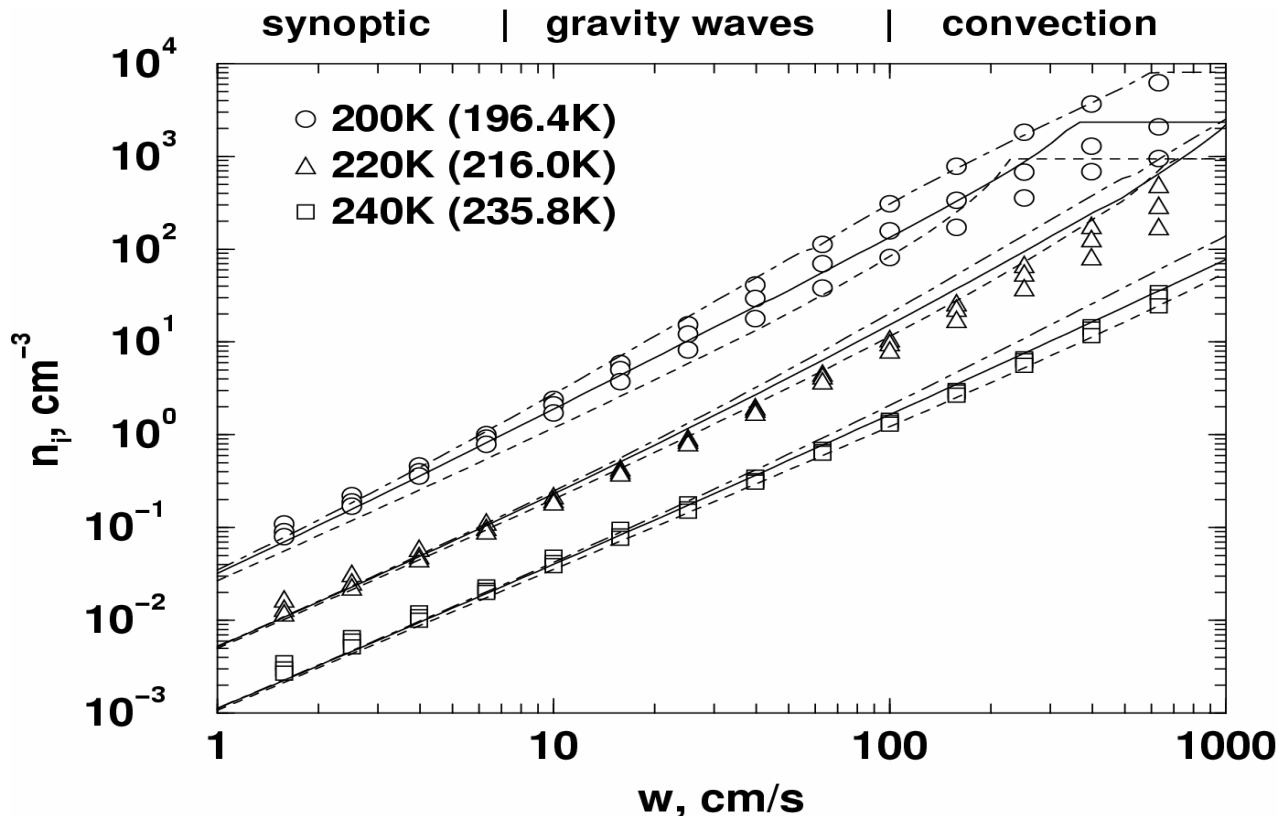
**Abb. 16:** Falschfarbenkomposit (unten), aus ATSR-2 Daten abgeleitete optische Dicke (oben links) und effektiver Partikelradius (oben rechts) von Zirruswolken über der Nordsee (Kanalregion zwischen England und Frankreich). Wasserwolken und Landoberflächen wurden maskiert.

## 2.5 Teilprojekt 4

TP 4 besteht aus drei Einzelprojekten. Zwei davon widmeten sich der Interpretation von Messungen, besonders aus den EU-Projekten INCA und MOZAIC sowie den in PAZI durchgeführten Kampagnen, und entwickelten innovative Parameterisierungen wichtiger Prozesse zum Gebrauch im Klimamodell ECHAM. Das dritte Einzelprojekt synthetisierte viele Resultate, die im Projekt gewonnen wurden und integrierte diese in das globale Modell ECHAM. Alle drei Einzelprojekte verwendeten einen großen Anteil ihrer Zeit auf Neu- und Weiterentwicklungen von Modellen, um so den Zielen von PAZI näher zu kommen.

Mit Hilfe der Prozeßstudien und der Parameterisierungen aus EP 4.1 und EP 4.2 konnte die Behandlung des Wasserdampfes, speziell in eisübersättigten Regionen, im Klimamodell erstmals entscheidend verbessert werden. Dies ist eine grundlegende Voraussetzung für realistische Simulationen der Aerosol-Zirrus-Wechselwirkung auf globaler Skala. Die Analyse von INCA und AIDA Messungen führte zu einer Konsolidierung des gegenwärtigen Verständnisses über die zentrale Rolle homogener Gefrierprozesse bei der Bildung von Zirren.

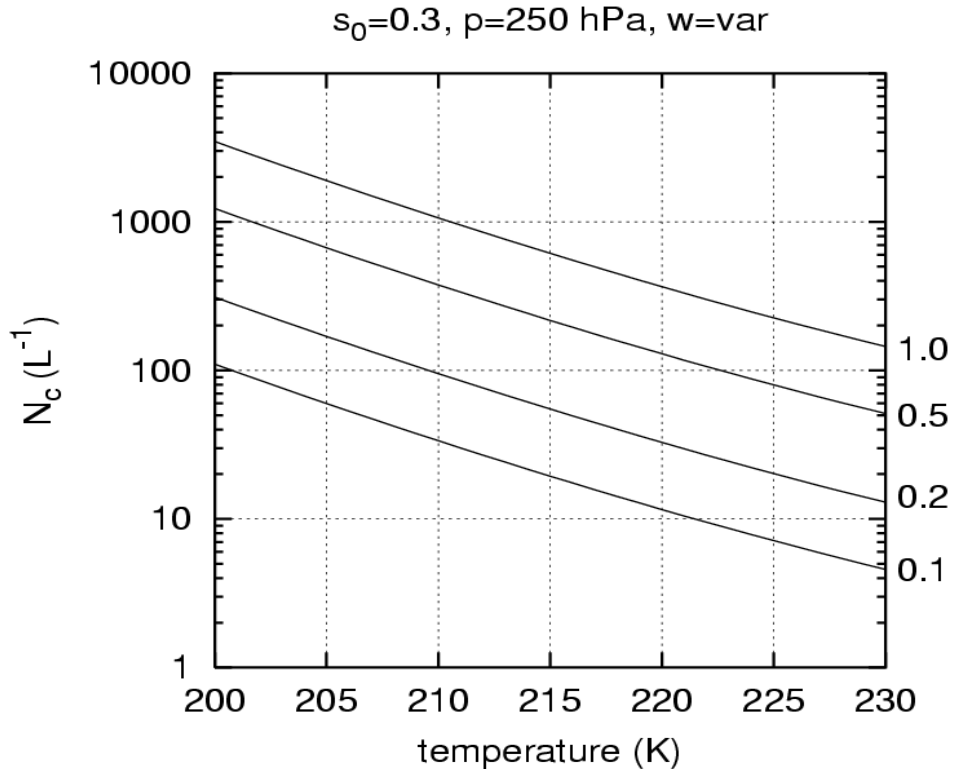
Zur besseren Quantifizierung der globalen Verteilung von Rußpartikeln aus Flugzeugtriebwerken wurden in EP 4.3 die Ergebnisse aus TP 1 zu Rußemissionen in ECHAM integriert. Es wurden zusätzlich die Emissionen von Ruß aus anderen anthropogenen und natürlichen Quellen so akkurat wie derzeit möglich im Modell repräsentiert. Dies erlaubte eine weitaus bessere Einordnung der Flugzeugemissionen ins globale Rußbudget im Vergleich zu früheren Arbeiten. Erste Fortschritte wurden bei der Behandlung von Zirren und deren fraktionellem Bedeckungsgrad in ECHAM gemacht. Eine Reihe von Sensitivitätsstudien belegt, daß der Luftverkehr prinzipiell die Anzahl der Eiskristalle in Zirren auf globaler Skala durch Kondensstreifen und Rußaerosole ändern kann und rechtfertigt somit weitere Forschung.



**Abb. 17:** Anzahlkonzentration von Eiskristallen als Funktion der Vertikalgeschwindigkeit  $w$  für verschiedene Gefriertemperaturen  $T$ . Symbole sind Ergebnisse aus numerischen Simulationen, die entsprechenden Kurven wurden aus einer analytischen Parametersierung gewonnen. Für jeden  $(T,w)$  Punkt werden drei Ergebnisse gezeigt, denen verschiedene Aerosolparameter zugrunde liegen.

Abbildung 17 verdeutlicht die Güte der in PAZI entwickelten Parameterisierung der Zirrenbildung durch homogenes Gefrieren. Somit liegt erstmals eine auf den physikalischen Prozessen wie Nukleation und Eiskristallwachstum basierende, analytische Berechnungsvorschrift vor, die es erlaubt, Zirrusbildung auch in großskaligen Modellen zu behandeln. Erste interaktive Simulationen von Eisübersättigung und Zirren im Klimamodell ECHAM wurden durchgeführt. Damit konnte bestätigt werden, daß unterkühlte flüssige Aerosole die Anzahl der Eiskristalle in Zirren nur schwach modulieren (im Gegensatz zu Temperatur und Vertikalwind).

Homogen gefrierende Aerosolpartikel stehen mit heterogenen Eiskernen in Konkurrenz. Welcher Partikeltyp beim Gefrierprozeß dominiert, hängt vom Spektrum des Vertikalwindes, von der Temperatur sowie der Größe, Anzahl und Gefriereigenschaften der Eiskerne ab. Aus der Interpretation der INCA Messungen folgte unter anderem, daß bei den Messungen über Prestwick zwar heterogene Eiskerne vorhanden waren, deren Anzahl aber nicht ausreichte, um zu verhindern, daß homogenes Gefrieren dennoch häufig auftrat (vgl. Abb. 9).

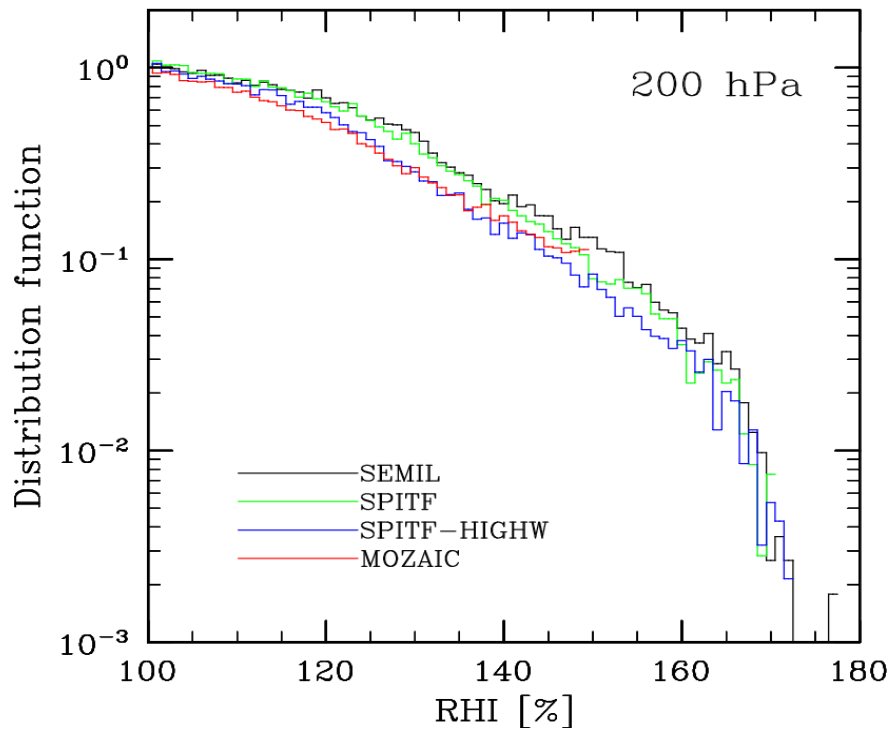


**Abb. 18:** Kritische Konzentrationen heterogener Eiskerne oberhalb derer homogenes Gefrieren unterbunden wird als Funktion der Temperatur und der Vertikalwindgeschwindigkeiten (rechten Ordinate). Hierbei wurde vorausgesetzt, daß heterogene Eisbildung bei 130% relativer Eisfeuchte einsetzt.

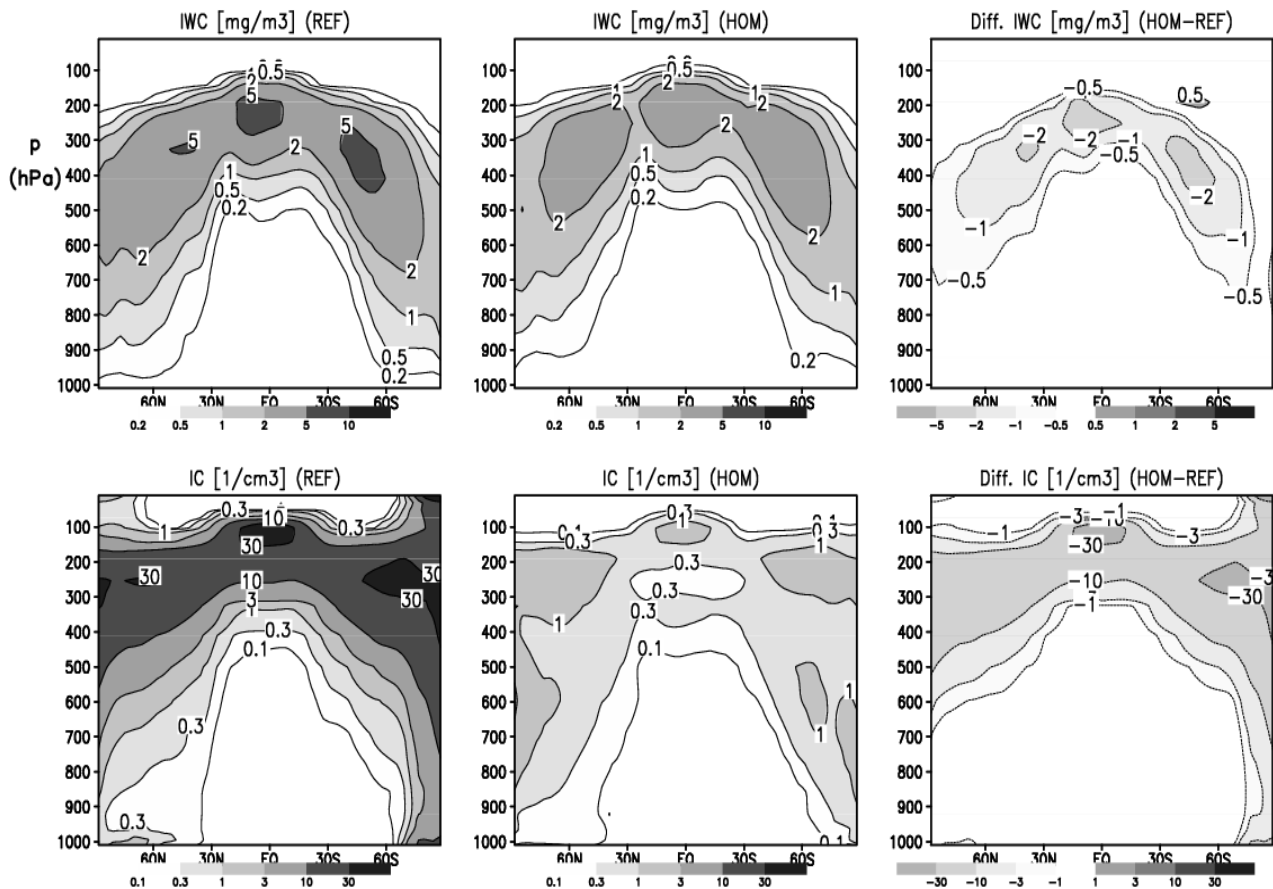
Unter Zuhilfenahme einer Berechnung der kritischen Konzentration von Eiskernen, oberhalb derer homogenes Gefrieren verhindert wird, kann man eine Obergrenze der über Prestwick vorhandenen Eiskernkonzentrationen abschätzen (Abbildung 18). Während INCA herrschten typische Gefrieretemperaturen von 222 K und mittlere Vertikalwinde von 20-30 cm/s vor. Der Vergleich mit den berechneten kritischen Konzentrationen ergibt somit eine Obergrenze von etwa  $0.03\text{-}0.08 \text{ cm}^{-3}$  bei einer angenommenen relativen Gefrierfeuchte über Eis von 130%. Im Vergleich dazu existieren einige  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  Rußpartikel aus dem Luftverkehr in der oberen Troposphäre im Jahresmittel (siehe Abb. 22 weiter unten). Die Rußemissionen des Luftverkehrs sind also hinreichend hoch, um prinzipiell die Zirrenbildung zu beeinflussen, vorausgesetzt alle Rußpartikel stellen effektive Eiskerne dar.

Einhergehend mit der Behandlung von Zirren in ECHAM können nun auch eisübersättigte Gebiete im globalen Modell prognostiziert werden (siehe Abbildung 19). Üblicherweise wird eine vom Modell in einem Zeitschritt vorberechnete Eisübersättigung instantan in Wolkeneiswasser überführt, die Anzahl und Größe der Zirruspartikel wird dann zur Bestimmung der Strahlungswirkung vorgeschrieben. Demnach wird in solchen Modellen keine Übersättigung berechnet. Diese starke Beschränkung konnte nun aufgehoben werden. Vergleiche von ECHAM und MOZAIC Daten zeigen, daß in ECHAM in Kombination mit der Zirrusparameterisierung realistische Häufigkeitsverteilungen der Eisübersättigung berechnet werden können.



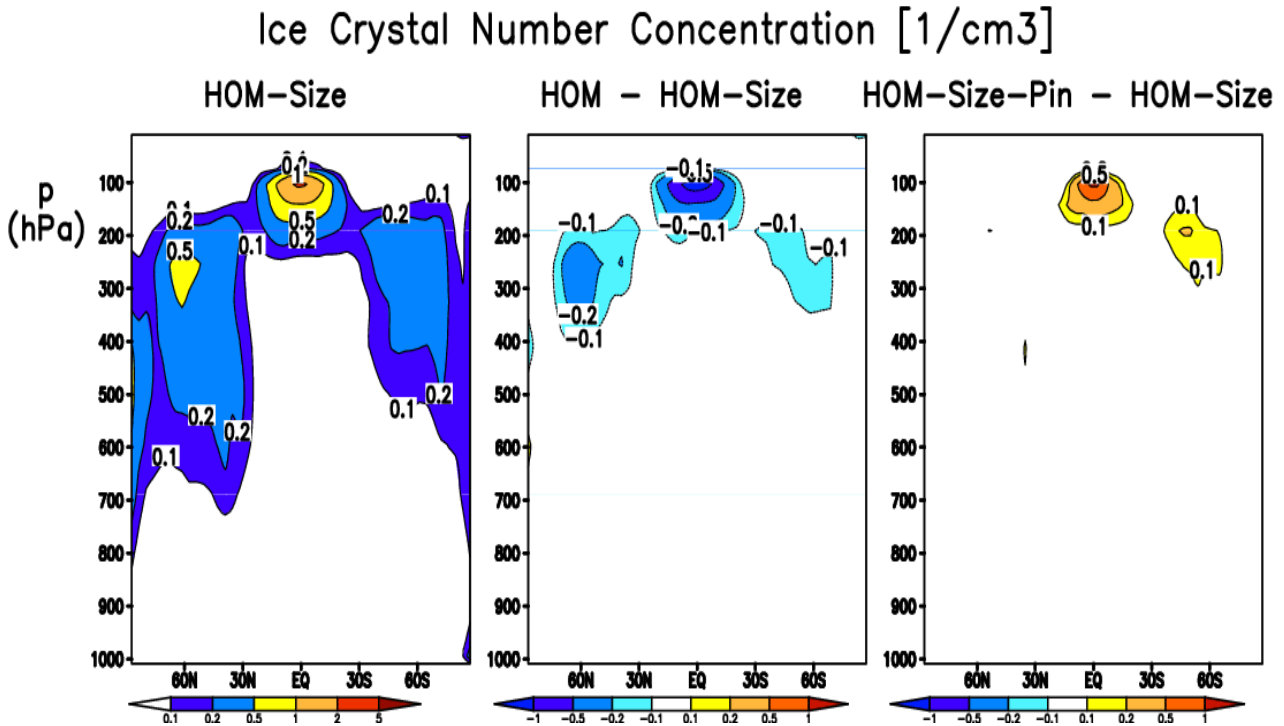


**Abb. 19:** Mit ECHAM berechnete Häufigkeitsverteilungen der relativen Feuchte über Eis in übersättigten Gebieten im Vergleich zu MOZAIC Daten (rot). Für die globalen Modellrechnungen wurden verschiedene Advektionsalgorithmen verwendet.



**Abb. 20:** Von ECHAM berechneter Eiswassergehalt (oben) und Anzahlkonzentration von Eiskristallen (unten) im Zonal- und Jahresmittel für einen Lauf mit Sättigungsadjustierung (REF, linke Spalte) und mit der neuen Zirrusparameterisierung (HOM, mitte). Die Differenzen (HOM-REF) sind rechts gezeigt.

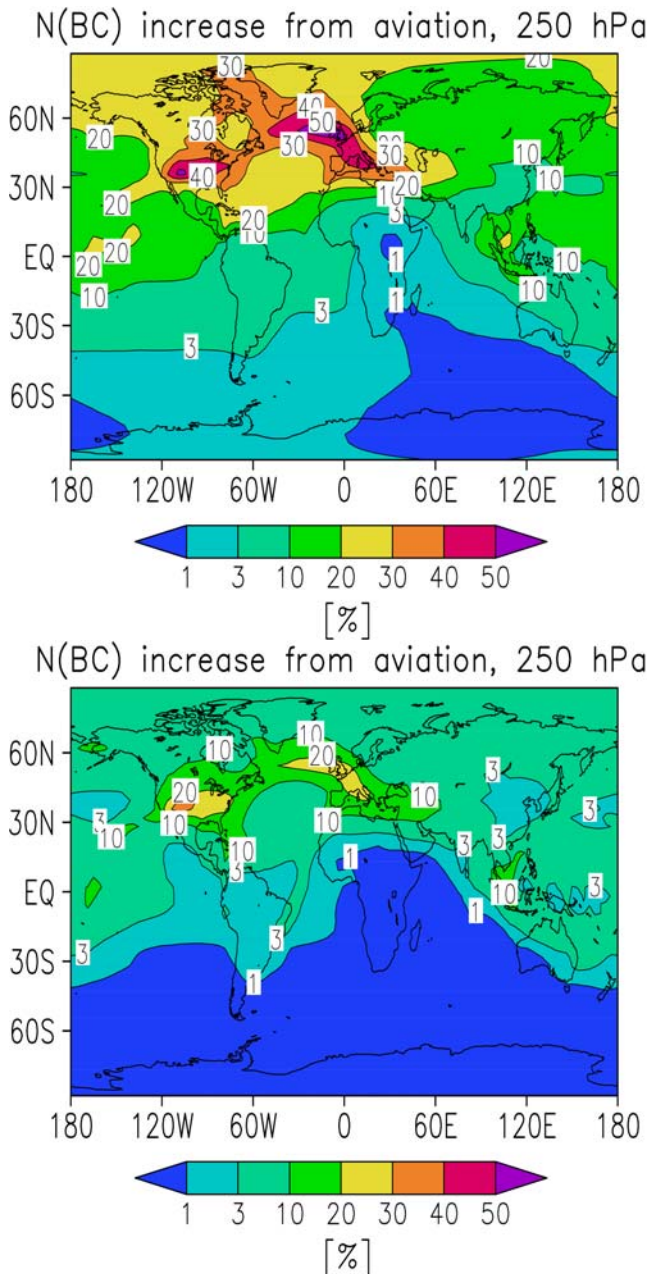
Der Unterschied zwischen der üblichen Methode zur Bestimmung der Zirren mittels der oben beschriebenen Sättigungsadjustierung (REF) und der in PAZI entwickelten (HOM) ist in Abb. 20 für den Eiswassergehalt und die Eispartikelanzahlkonzentration dargestellt. Im Fall HOM werden etwas geringere Eiswassergehalte prognostiziert und die berechnete Anzahl von Eiskristallen liegt in wesentlich realistischeren Größenordnungen von bis zu  $1 \text{ cm}^{-3}$ . Durch die selbstkonsistente Berechnung der Zirruseigenschaften sind erstmals neue, bislang unberücksichtigte Rückkoppelungseffekte von Zirren auf die Strahlung im Klimamodell zugelassen.



**Abb. 21:** Von ECHAM berechnete Anzahlkonzentration von Eiskristallen im Zonal- und Jahresmittel für einen Lauf mit der Zirrusparameterisierung (HOMsize, links). Die Differenz zu einem Lauf mit dem Einfluß des Vulkans Pinatubo (HOMsize-pin), der zu einer massiven Erhöhung der Masse großer Sulfatpartikel führte, ist rechts gezeigt. Das Ergebnis in der Mitte zeigt die generell schwache Abhängigkeit der Eiskristallzahl von Aerosolgröße und -anzahl durch Vergleich mit einem Modelllauf, bei dem der Einfluß der Aerosolgröße bei der Zirrusbildung (ohne Pinatubo) nicht berücksichtigt wurde (HOM).

Weiter wurde gezeigt, daß selbst stark erhöhte Sulfataerosolmassen (in der Akkumulations- und Grobpartikelmode) nach dem Ausbruch des Vulkans Pinatubo auf globaler Skala nur zu einer geringen (innerhalb eines Faktors 2) Erhöhung der Eispartikelkonzentrationen führen. Dies ist in Abb. 21 verdeutlicht, welche analog zu Abb. 20 einen Referenzlauf (HOMsize) und einen Lauf, der die Erhöhung der Aerosolbeladung enthält, wie sie nach der Eruption des Pinatubo in 1992 auftrat (HOMsize-pin), gegenüberstellt. Dies impliziert, daß die anfangs nur 5 – 10 nm großen Schwefelsäureaerosole aus Flugzeugen mit großer Wahrscheinlichkeit keinen Einfluß auf die Bildung und Entwicklung von Zirren nehmen.

Die bisherigen Ergebnisse unterstreichen die Bedeutung von Rußpartikeln als mögliche Einflußfaktoren bei der Bildung hoher Wolken. Dabei stellt sich die grundsätzliche Frage, wie groß der atmosphärische Anteil von Rußpartikeln aus Flugzeugen am Gesamtbudget aller Rußpartikel ist. Zur Beantwortung wurden auf der Basis verfügbarer Daten die Quellstärken für Rußaerosol aus allen anthropogenen und natürlichen Quellen in ECHAM integriert und somit neue globale Verteilungen dieses Aerosoltyps bestimmt.

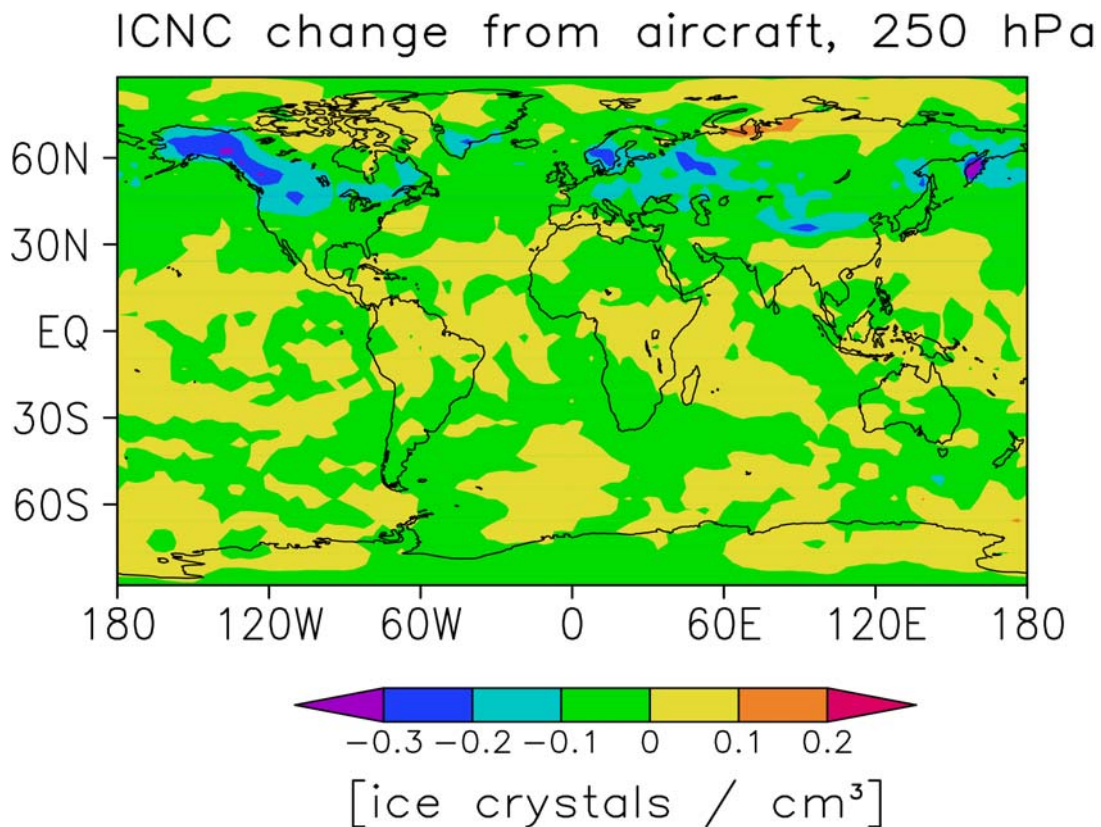


**Abb. 22:** Relative Erhöhung der Anzahlkonzentration atmosphärischer Rußpartikel durch globale Luftverkehrsemissionen im Jahresmittel in der oberen Troposphäre aus ECHAM Simulationen. Zur Eingrenzung des Effektes wurde die Störung durch Flugzeugemissionen im Modell maximiert (links) bzw. minimiert (rechts). Typische Konzentrationen von Rußpartikeln aus Bodenquellen liegen zwischen  $1\text{-}5\text{ cm}^{-3}$  im Bereich der Flugkorridore.

Abbildung 22 zeigt das Ergebnis der ECHAM Studien zur globalen Rußverteilung als Erhöhung (in %) der Rußanzahlkonzentration durch die Flotte von Flugzeugen (basierend auf den Ergebnissen aus TP 1) in den Flugniveaus (250 hPa). Die berechnete Werte liegen im Jahresmittel zwischen 1-50%. Das linke (rechte) Bild zeigt den Effekt unter Maximierung (Minimierung) der Rußpartikelanzahl aus dem Luftverkehr; um den Effekt zu maximieren wurde jegliches mikrophysikalische Altern der Partikel unterbunden (durch Minimierung möglicher Verlustprozesse). Das gefundene Potential zur Erhöhung der atmosphärischen Rußkonzentration durch den Luftverkehr rechtfertigt demnach weitere Studien über einen möglichen Einfluß auf die Bewölkung und das Klima.

Ein erster Schritt hierzu wurde ebenfalls in PAZI gemacht. Hierzu wurden zwei Modellläufe aus ECHAM miteinander verglichen. Der erste ist identisch zum Fall HOMsize aus Abb. 21. Der zweite Fall schreibt heterogenes Gefrieren an Rußpartikeln aus dem Luftverkehr vor in Gebieten, in denen die Anzahl der Flugzeugrußpartikel den Schwellwert  $0.5 \text{ cm}^{-3}$  übersteigt; ansonsten erfolgt homogenes Gefrieren wie im ersten Fall. Es handelt sich also um eine Abschätzung des potentiellen indirekten Effektes, bei der die Emission und nachfolgende Dispersion von Rußpartikeln Einfluß auf die Zirrusbildung nimmt. Der direkte Effekte von Kondensstreifen (siehe Abb.15) bleibt hier unberücksichtigt.

Mit diesem Szenario wird der indirekte Flugzeugeinfluß auf Zirren in der Modellwelt vermutlich überschätzt – ein Grund hierfür sind neben dem relativ hoch gewählten Schwellenwert die simulierten Kühlraten, die auch nach empirischen Korrekturen deutlich unterhalb der atmosphärischen Werte liegen können. Wie mittels Abb. 23 gezeigt, führt dieses Szenario im Mittel zu einer Verminderung der Eiskristallkonzentrationen um einige 10%. Andere denkbare Szenarien könnten auch zu einer Erhöhung führen. Rückwirkungen der berechneten Zirrusänderungen auf den Bedeckungsgrad können bei solchen Rechnungen zur Zeit noch nicht berücksichtigt werden.



**Abb. 23:** Änderung der Anzahlkonzentrationen von Eispartikeln in Zirren bei einem Szenario des indirekten Flugzeugeffektes, der den Einfluß auf Zirreneigenschaften vermutlich maximiert. Typische totale Konzentrationen von Zirruspartikeln in den Flugkorridoren liegen bei etwa  $1 \text{ cm}^{-3}$ . Das Resultat basiert auf einem Lauf mit 5 Modelljahren und ist marginal statistisch signifikant.

Das Ergebnis aus Abb. 23 ist jedoch wie bereits angedeutet mit großen Unsicherheiten behaftet. Zum einen müssen noch mehr Modelljahre berechnet werden, um eine robuste Aussage über die statistische Signifikanz dieses Ergebnisses zu gewinnen. Zum anderen ist unklar, inwieweit Staub- oder Rußpartikeln aus anderen Quellen zur Zirrusbildung beitragen. Daneben existieren ungelöste Probleme im Zusammenhang mit der Unterschätzung der dynamischen

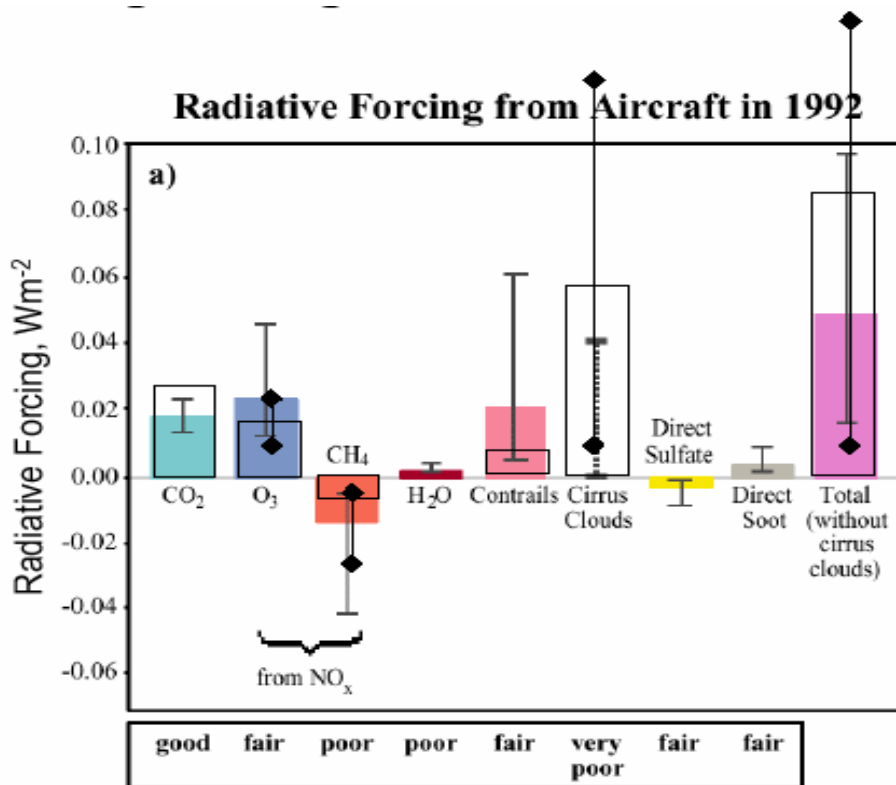
Variabilität des Vertikalwindes und anderen subskaligen Effekten, sowie eine mit der hier entwickelten Wolkenmikrophysik konsistente Bestimmung des Zirrusbedeckungsgrades. Hierzu sind weitere Grundlagenarbeiten nötig, zu denen PAZI die richtige Orientierung vorgeben konnte.

## 2.6 Zusammenfassung und Bewertung der wichtigsten Ergebnisse

- Unter all den aus Flugzeugtriebwerken emittierten Partikeltypen spielen nur die Rußpartikel eine zentrale Rolle bei der Aerosol-Zirren-Wechselwirkung.
- Neue Algorithmen erlauben eine verbesserte Prognose der physikalischen Eigenschaften von Triebwerksrußaerosol in numerischen Simulationen des Verbrennungsvorganges.
- Neuartige Messungen in PartEmis führen zu einer genaueren Charakterisierung der chemischen Zusammensetzung und der Größenverteilung emittierter Rußpartikel.
- Neue Simulationen mit ECHAM, die auf verbesserten Rußemissionsmodellen beruhen, erlauben eine genauere Eingrenzung des Luftverkehrs zum globalen Rußbudget.
- Neuartige Studien in der Aerosol-/Wolkenkammer AIDA in Kombination mit Modellanalysen erhärten den Stand des Wissens über homogene Gefrierprozesse in Zirren.
- AIDA Messungen lassen ferner vermuten, daß Rußpartikel effektivere Eisbildner sind als die allgegenwärtigen, unterkühlten Lösungströpfchen.
- Die Kombination verschiedener Partikelmeßinstrumente während INCA belegt die Dominanz hoher Konzentrationen kleiner, durch homogenes Gefrieren entstandener Eiskristalle
- Neuartige Messungen während INCA belegen, daß die Stärke und Variabilität mesoskaliger Vertikalbewegungen den kontrollierenden Faktor bei der Zirrusbildung darstellt.
- Neue Lidar Studien zeigen eine substantielle Auftrittswahrscheinlichkeit unsichtbarer Zirren, zum Teil mit extrem geringen optischen Tiefen, auch in mittleren Breiten an.
- Neuartige in INCA entwickelte Algorithmen erlauben die Fernerkundung von Zirren auch in Gegenwart tieferliegender Mischwolken.
- Neue Analysen von METEOSAT und EUROCONTROL Daten über Europa zeigen eine klare Korrelation zwischen dem Zirrusbedeckungsgrad und der Luftverkehrsdichte.
- Neue Parameterisierungen zur Beschreibung von Nukleation von Eiskristallen ermöglichen erstmalig die Berechnung von Eisübersättigung und Zirren in globalen Modellen.
- Die ersten Simulationen der Rußaerosol-Zirrus-Wechselwirkung mit ECHAM zeigen das Potential für einen signifikanten, indirekten Einfluß von Flugzeugemissionen auf die Konzentration von Eiskristallen in Zirren auf.

Die Ergebnisse des Projekts wurden auf der Konferenz "Aviation, Atmosphere and Climate" vom 30. Juni bis 3. Juli 2003 in Friedrichshafen der internationalen Fachwelt in einem eingeladenen Übersichtsvortrag (B. Kärcher) vorgestellt. Die Ergebnisse wurden mit großem wissenschaftlichen Interesse aufgenommen. Verwandte Arbeiten außerhalb von PAZI wurden nur von einigen amerikanischen Gruppen vorgestellt (u.a. J. Penner, R. Friedl). Es gibt international derzeit kein Projekt zu diesem Thema von vergleichbarer Breite und Tiefe.





**Abb. 24:** Strahlungsantrieb („radiative forcing“) infolge des Luftverkehrs bis 1992 (für CO<sub>2</sub> bis 2000). Die farbigen Balken und die Fehlerbalken mit waagerechten Endlinien stammen aus IPCC (1999). Die weißen Balken und die Fehlerbalken mit Rhomben entsprechen dem gegenwärtigen Kenntnisstand (Schumann, 2003).

Zusammen mit Ergebnissen anderer Projekte (insbesondere dem EU-Projekt TRADEOFF) führten die Ergebnisse zu einer Revision des gegenwärtigen Kenntnisstandes zum Strahlungsantrieb des Klimasystems durch die Emission des Luftverkehrs, siehe Abb. 24. Die ursprüngliche Abbildung gehört zu den am häufigsten zitierten Ergebnissen der internationalen Bewertung der Klimaauswirkungen des Luftverkehrs von 1999. Es ist offenbar an der Zeit, den IPCC-Bericht insgesamt zu revidieren. Die Ergebnisse von PAZI sind hierfür eine wichtige Grundlage. Zugleich hat die Konferenz gezeigt, daß die Fragen der Modellierung der Rußentstehung und die der Auswirkung von Ruß und Kondensstreifen auf Zirren noch nicht abschließend beantwortet werden können.

Zusammenfassend kann ein Fortschritt bei der Quantifizierung des möglichen Einflusses des Luftverkehrs auf Zirrusbewölkung und Klima nur dann erzielt werden, wenn folgende Probleme besser verstanden sind:

- Kleinskalige dynamische Variabilität von Temperatur bzw. Vertikalwinden,
  - Indirekte Aerosoleffekte bei der Eisbildung,
  - Bedeckungsgrad und Strahlungseigenschaften von Zirren,
- sowie der Implementierung verbesserter Parameterisierungen in globalen Modellen.

Das Folgeprojekt PAZI-2 wird sich verstärkt diesen Problemen zuwenden.

## 2.7 Antrag für ein Folgeprojekt

Zur Zeit wird ein Folgeantrag PAZI-2 vorbereitet. Nach Abstimmung mit den beteiligten Gruppen wurde den Projektdirektionen Luftfahrt und Raumfahrt des DLR am 5. Juni 2003 eine Projektskizze (s. Anhang 2) vorgelegt. Diese Skizze erläutert die Motivation, die Ziele und

die Projektstruktur sowie Laufzeit, Umfang und Ressourcen von PAZI-2. Das Folgeprojekt wird als DLR-Projekt geführt, bindet aber wieder Arbeitsgruppen aus der HGF, MPG und aus Universitäten des In- und Auslandes mit ein. Es liegen bereits mehrere Schreiben der zukünftigen Partner vor, die Unterstützung für PAZI-2 signalisieren. Die in PAZI-2 vorgeschlagenen Arbeiten und Meßkampagnen können als Nukleus oder Beiträge für zukünftige Drittmittelvorhaben dienen.

Basierend auf der Bewertung der Ergebnisse von PAZI lauten die wesentlichen offenen Fragen von PAZI-2 wie folgt:

- Wie ist der Einfluß des Luftverkehrs auf Aerosole und Wolken in Relation zu anderen natürlichen und anthropogenen Störungen einzuordnen ?
- Kann der Einfluß von Flugzeugen auf die Bildung von Eiswolken im in-situ Experiment direkt nachgewiesen und quantifiziert werden ?
- Gibt es Trends in der Zirrusbewölkung und welches sind mögliche Ursachen ?

Die strategischen Ziele, die zur Beantwortung dieser Fragen führen sollen, sind:

- Entwicklung von Verfahren zur besseren Berücksichtigung der Aerosol-Wolken-Strahlungswechselwirkungen in großskaligen Atmosphärenmodellen (Prozeßstudien, Labor- und Feldexperimente, Satellitenfernerkundung)
- Untersuchung von Rußprozessen unter triebwerksnahen Bedingungen (HBK-S) und Entwicklung von Simulationstechniken für reale Brennkammern (THETA-Code)
- Abschätzungen der Klimawirkungen aller Aerosole und daraus gebildeter Wolken (ECHAM)

### 3 Berichte aus den Einzelprojekten

Wie in den zurückliegenden Statusberichten folgen an dieser Stelle die Berichte der Einzelprojektleiter, die einen Überblick über die Arbeiten im letzten Projektjahr (hier: 1.7.2002 - 30.6.2003) geben. Die Zusammenschau der Ergebnisse aller Projektjahre wurde im Kapitel 2 gegeben.

#### 3.1 Rußemissionen und Aerosolvorläufergase

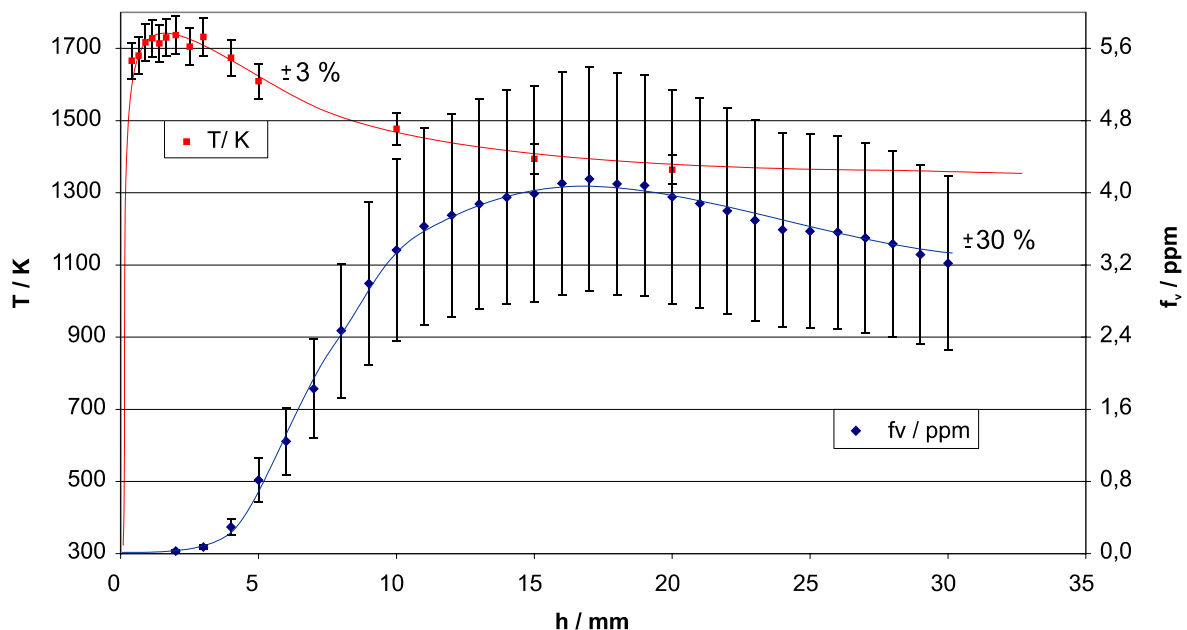
##### 3.1.1 Rußbildung und Gasphasenchemie in Brennkammern

Fachkoordination Dr. P. Gerlinger, DLR-VT  
 Zuordnung TP1 – Rußemissionen und Aerosolvorläufergase

#### Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse

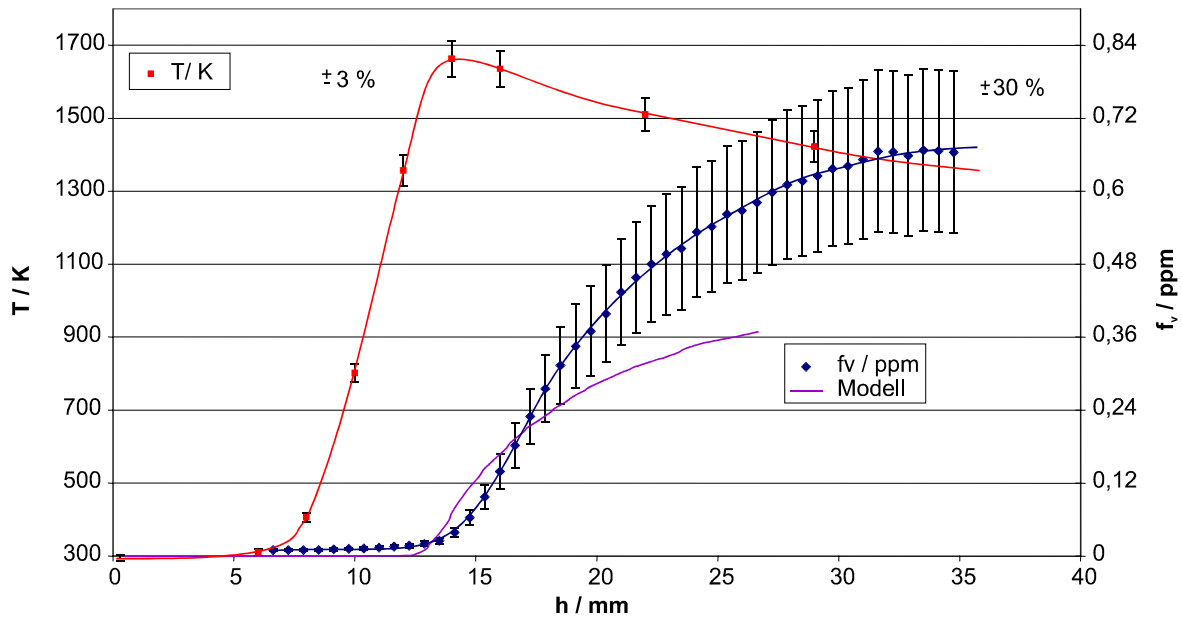
##### Arbeitspaket 1: Laborexperimente zur Weiterentwicklung von vorhandenen Rußmodellen

Nach Abschluss der Rußvolumenbruch- und Temperatur-Messungen an laminaren, vorgemischten Ethen/Luft-Flammen (im vergangenen Projektbericht beschrieben) hat sich eine Drift in der Kalibration der verwendeten Durchflussmesser herausgestellt. Um die umfangreichen Datensätze dennoch nutzen zu können, waren zeitaufwendige Neukalibrationen und Flammentests notwendig, mit denen die zuvor vermessenen Flammenbedingungen bestätigt oder neu bestimmt wurden. Die vollständigen experimentellen Datensätze (Rußkonzentrations- und Temperaturprofile für Ethen bei verschiedenen Stöchiometrien und Drücken) liegen inzwischen vor und wurden an die Arbeitsgruppe Kinetik weitergegeben, wo sie zur Validierung des Rußbildungsmodells dienen. Abbildung 1 zeigt beispielhaft ein Ergebnis dieser Messreihen. Aufgetragen sind experimentell bestimmte Verläufe des Rußvolumenbruchs und der Temperatur in einer Ethen/Luft-Flamme. Im hier dargestellten Fall liegt der Druck bei 3 bar und das Stöchiometrieverhältnis bei  $\phi = 2,3$ . Auf Basis dieser Datensätze erfolgt die Weiterentwicklung detaillierter Rußmodelle, wie sie im letzten Projektbericht beschrieben wurden.



**Abb. 1:** Messungen zur Rußbildung in einer vorgemischten Ethen/Luft-Flamme bei  $p = 3$  bar und einem Stöchiometrieverhältnis von  $\phi = 2,3$ .

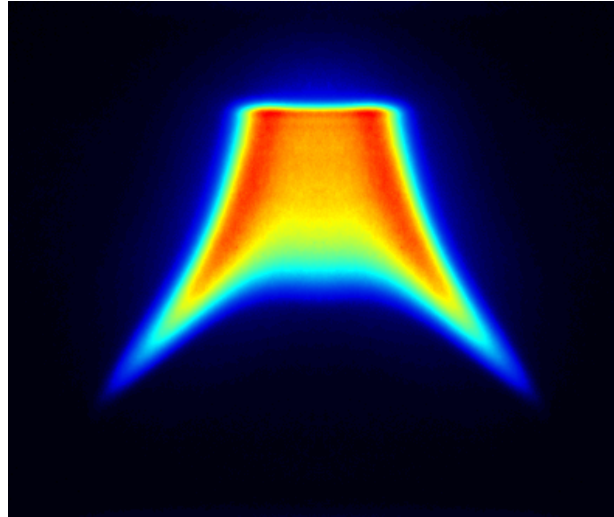




**Abb. 2:** Gemessene Temperatur- und Rußvolumenbruchprofile in einer vorgemischten atmosphärischen Propen/Luft-Flamme bei einem Stöchiometrieverhältnis von  $\phi = 2,2$  sowie ein simulierter Rußvolumenbruchverlauf.

Da der Rußbildungsprozess neben den untersuchten Einflussparametern (Druck und Stöchiometrieverhältnis) auch stark vom verwendeten Brennstoff abhängt, wurden weitere Messreihen für Propen/Luft-Flammen durchgeführt (bei Drücken von 1, 2, 3 und 5 bar). Wie zuvor wurden die Profile der Rußkonzentrationen mit LII (Laser Induzierte Inkandescenz) aufgenommen und (so weit möglich) mit SV-CARS (Shifted Vibrational Coherent Anti-Stokes Raman Scattering) die damit korrelierten Temperaturprofile. Bei einem Betriebsdruck von 5 bar zeigten die Propen-Flammen starke Strahlenbildung und relativ starke Fluktuationen in der Position der Reaktionszone. Die atmosphärischen Flammen ließen sich dagegen hinreichend gut stabilisieren. Auch die Propen-Messungen sind inzwischen vollständig ausgewertet und ermöglichen eine Validierung entsprechender kinetischer Rechnungen. Abbildung 2 zeigt Resultate einer atmosphärischen Ethen/Luft-Flamme mit einem Stöchiometrieverhältnis von  $\phi = 2,2$ . Neben der gemessenen Temperatur und dem Verlauf des Rußvolumenbruchs sind darin auch Resultate der Simulation dargestellt. Während das ursprüngliche Modell für die Rußbildung nicht in der Lage war, den experimentellen Anstieg des Rußvolumenbruchs korrekt wiederzugeben, gelingt dies mit dem verbesserten Modellansatz verhältnismäßig gut (siehe auch letzter Projektbericht).

Ein direkter Vergleich der mit unterschiedlichen Brennstoffen erzielten experimentellen Daten (speziell: Position der Reaktionszone und des Rußanstiegs) ist nicht sinnvoll, da aus Gründen der Flammenstabilität die Strömungsgeschwindigkeiten der Gasgemische deutlich variieren. Im Unterschied zu den Ethen-Druckflammen, bei denen die Flamme direkt auf die Brenneroberfläche aufsetzt, ist im Fall des Propens eine Flammenstabilisierung in einigen Millimetern Abstand von der Brenneroberfläche möglich. Der Temperaturanstieg ist somit bei den untersuchten Propen-Druckflammen experimentell besser zugänglich.

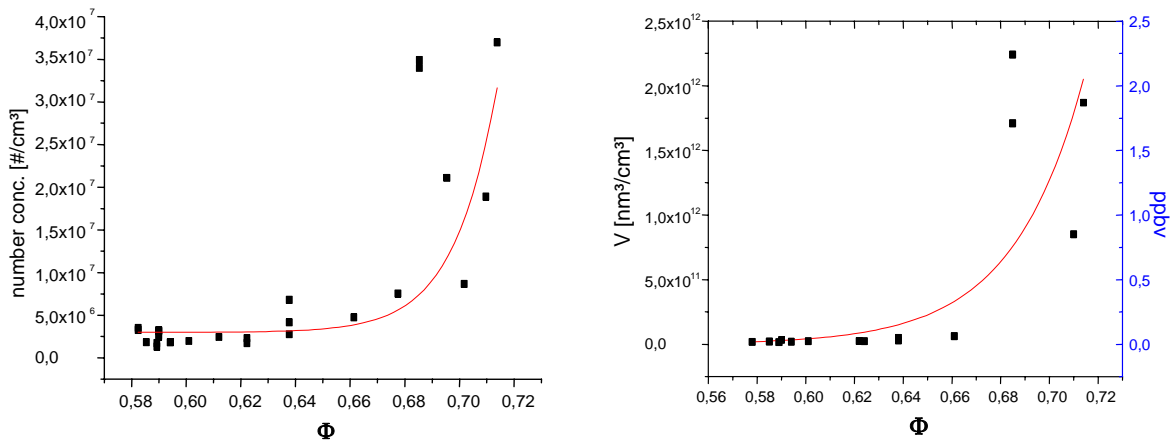


**Abb. 3:** Zeitlich stabile und räumlich homogen vorgemischte Toluol/Luft-Flamme bei einem Druck von  $p = 1$  bar und einem Stöchiometrieverhältnis von  $\phi = 2,5$ .

Während die bisherigen Experimente und Modellrechnungen ausschließlich der Untersuchung einfacher aliphatischer Kohlenwasserstoffe dienten, finden derzeit Versuche unter Verwendung von vorverdampftem Toluol (als einem Vertreter aromatischer Spezies) statt. Validierungsdaten zur Chemie eines Repräsentanten dieser relevanten Flugtreibstoff-Komponente standen bislang nicht zur Verfügung. Zur Realisierung dieser Messungen musste die Brennerversorgung vollständig umgebaut werden, da das Zuleitungssystem bei Temperaturen oberhalb des Siedepunkts von Toluol ( $111^\circ\text{C}$ ) gehalten werden muss und eine vollständige Verdampfung des Brennstoffs sicherzustellen ist. Erste Studien zur Flammenstabilisierung von Toluol-Flammen unter Zuhilfenahme von LII (zur Visualisierung der Rußbildung) sind erfolgreich verlaufen. Abbildung 3 zeigt eine stabile atmosphärische Toluol/Luft-Flamme. Quantitative Messungen von Rußkonzentrations- und Temperaturprofilen sind derzeit in Arbeit.

#### Arbeitspaket 2: Experimente am Hochdruckkanal HBK-S

Nach erfolgreicher Inbetriebnahme des HBK-S (Hochdruckbrennkammerprüfstand Stuttgart) Anfang 2002 wurden in dieser Berichtsperiode mehrere Meßkampagnen an der PAZI-Modellbrennkammer (im halbertechnischer Maßstab) durchgeführt. Bedingt durch die Komplexität der Anlage mussten zunächst Erfahrungen hinsichtlich des Betriebs der Brennkammer und des Anfahrens unterschiedlicher Betriebspunkte gewonnen werden. Der Schwerpunkt der Arbeiten lag daher anfänglich in der Stabilisierung der Flamme und bei Verbesserungen im Kühlsystem. Diese Arbeiten waren notwendig, um Untersuchungen in unterschiedlichen Druckbereichen und bei unterschiedlicher Stöchiometrie zu ermöglichen. Der größte Teil der erfolgten Messkampagnen lag jedoch bei einem Druck von 10 bar, was den Cruise-Bedingungen moderner Flugtriebwerke entspricht. Vor allem im fetten Betrieb hat sich bei der ersten Version der PAZI-Brennkammer eine sehr hohe thermische Belastung gezeigt, die Änderungen am Brennkammerkonzept notwendig machte. Der hintere Teil der PAZI-Brennkammer wurde aus diesem Grund mit Kühlungsstiften versehen und das Konzept der Sekundärlufteinblasung verbessert (siehe auch Abb. 7).

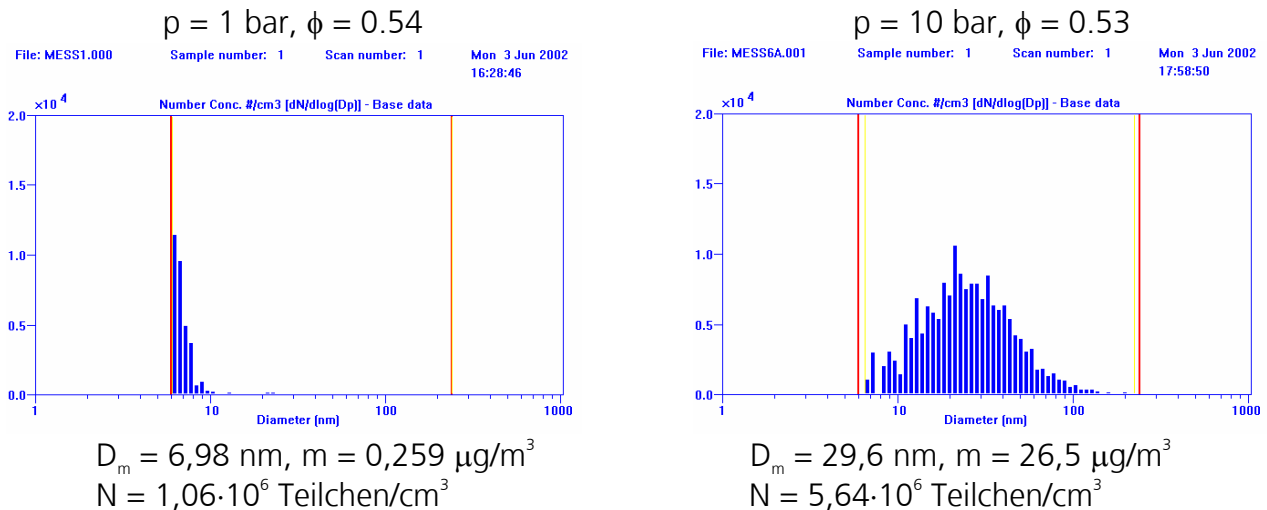


**Abb. 4:** Einfluss des lokalen Stöchiometrieverhältnisses in der Brennkammer auf die Rußteilchenkonzentration (links) und den Rußvolumenanteil (rechts).

Da ein optischer Zugang zur Brennkammer im Rahmen von PAZI I nicht vorgesehen war, lag der Schwerpunkt messtechnischer Erfassung auf Sondenmessungen in der Flamme, überwiegend jedoch am Brennkammeraustritt. Die Basis hierzu bildet ein Gasanalyse-System, dem die entsprechenden Proben zugeführt werden. Das Abgas wird hierzu über Sonden aus der Brennkammer gezogen und entweder durch eine beheizte Edelstahlleitung unverdünnt in die Analytik transferiert, oder zur Rußmessung direkt nach der Sonde durch zwei Verdünnungsstufen definiert verdünnt. Im zweiten Fall wird das verdünnte Abgas mittels einer beheizten Edelstahlleitung einem SMPS-System zugeführt. Auf diese Weise lassen sich Partikeldurchmesser von 6 nm bis 600 nm und Anzahlkonzentrationen von bis zu  $1 \cdot 10^9$  Partikel pro  $\text{cm}^3$  bestimmen. Gleichzeitig werden vom Analysesystem folgende Abgaskomponenten erfasst:  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  und UHC.

Alle Versuche am HBK-S erfolgten mit Kerosin (Jet-A1) als Brennstoff. In Abb. 4 sind beispielhaft Ergebnisse von Messungen in der Brennkammer gezeigt. Dargestellt sind mit einem SMPS gewonnene Rußteilchenkonzentrationen (links) und Rußvolumenbrüche (rechts) bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen der PAZI-Brennkammer. Die Rechtecke geben die Messwerte wieder, welche zusätzlich durch eine Kurve angenähert wurden. Der Brennkammerdruck lag bei diesen Untersuchungen bei 10 bar, während das lokale Stöchiometrieverhältnis am Messort variierte. Das lokale Stöchiometrieverhältnis wird aus dem  $\text{CO}_2$ -Wert des Abgases an der Probenahmestelle und dem Kohlenstoffgehalt des Kerosins bestimmt. Wie zu erwarten, zeigt sich mit fetter werdenden Bedingungen eine verstärkte Rußbildung.

In Abb. 5 sind Resultate von Sondenmessungen am Brennkammeraustritt gezeigt. Dargestellt sind Rußanzahlkonzentrationen als Funktion des Partikeldurchmessers bei zwei unterschiedlichen Brennkammerdrücken. In diesem Fall ist das lokale Stöchiometrieverhältnis der beiden Messungen nahezu identisch. Hier zeigt sich deutlich, dass bei niedrigerem Druck weniger Rußpartikel gebildet werden und diese darüber hinaus zu sehr kleineren Partikeldurchmessern hin verschoben sind. Das Rußverteilungsprofil, das sich bei 10 bar am Brennkammeraustritt einstellt, ist durchaus mit dem realer Triebwerke vergleichbar.



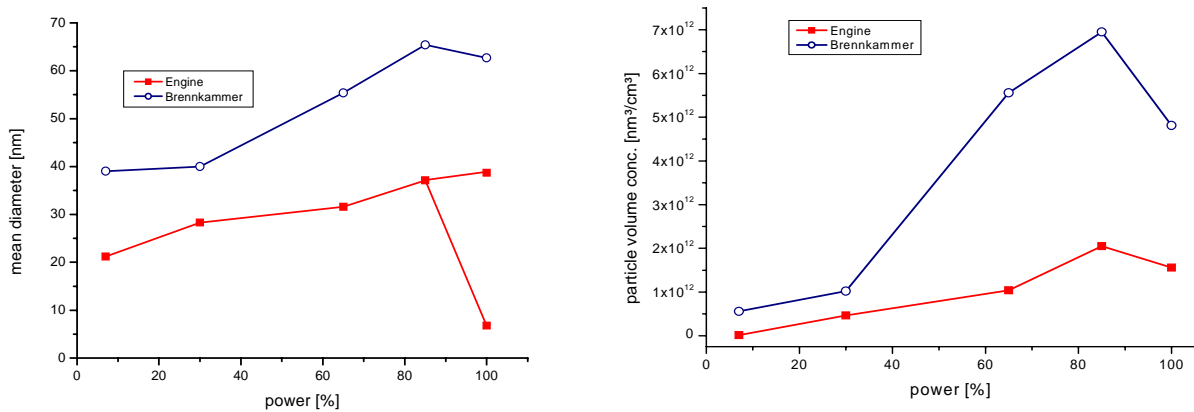
**Abb. 5:** Am Brennkammeraustritt gemessene Rußgrößenverteilung bei niedrigem (links) und hohem Druck (rechts) und nahezu gleichem lokalen Stöchiometrieverhältnis.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass der HBK-S seine Funktionstüchtigkeit bewiesen hat und an der PAZI-Brennkammer triebwerkstypischer Ruß erzeugt und gemessen werden konnte. Nach den Sondenmessungen an einzelnen Stellen in der Brennkammer und am Brennkammeraustritt liegt ein wesentlicher zukünftiger Schritt darin, genauere Aufschlüsse über die räumliche Verteilung der Rußbildungs- und oxidationsvorgänge in der Brennkammer zu erlangen. Dies erfordert optische Meßtechniken und den entsprechenden optischen Zugang zur unter Druck betriebenen Brennkammer. Mit diesen Kenntnissen lassen sich dann Schritte einleiten, die nicht nur die Messung des Rußes sondern auch seine Vermeidung zum Ziel haben.

### Arbeitspaket 3: Komponenten- und Triebwerksversuche bei Partnern aus der Industrie

Alle Rußmessungen bei Komponenten- und Triebwerksversuchen haben in enger Absprache mit Partnern aus der Industrie zu erfolgen, was auch die Terminplanung beeinflusst. Auf Grund technischer Probleme konnten die bereits für die vorangegangene Berichtsperiode geplanten Messungen an Prüfständen in Köln-Porz nicht durchgeführt werden (siehe Jahresbericht 2001/2002). Dies hat zu einer Verschiebung der Meilensteine dieses Arbeitspakets geführt. Die vorgesehenen Untersuchungen wurden jedoch im Sommer 2002 nachgeholt.

An einer gestuften Rolls-Royce Brennkammer (BR710/715) sind im Rahmen dieser Messkampagne Partikelmessungen am Brennkammeraustritt durchgeführt worden. Untersucht wurde ein  $60^\circ$  Segment der gesamten Brennkammer. Die Probenahmesonde war in diesem Sektor frei schwenkbar. Im Rahmen der Messungen ist neben den angefahrenen Lastpunkten auch die Stufung der Brennkammer variiert worden. Die Testpunkte waren so gewählt, dass sie denen vorangegangener Untersuchungen der Core Engine (am Höhenprüfstand der Universität Stuttgart im Rahmen des E3E Programms) entsprachen. Damit war ein Vergleich zwischen dem Triebwerk und einem Brennkammersegment der gleichen Baureihe möglich. Wie die Messungen gezeigt haben, emittiert die Brennkammer größere Partikel und damit mehr Rußmasse. Der Vergleich von Brennkammer und Engine zeigt einen ähnlichen Kurvenverlauf der Emissionen über der Last. Erwartungsgemäß nehmen die Rußemissionen mit der Last zu. In Abbildung 6 (links) sind die mittleren Durchmesser der Rußpartikel über der Triebwerksleistung aufgetragen. Die bei Take-Off-Bedingungen (volle Leistung) auftretende Verzweigung im mittleren Teilchendurchmesser (bei den Triebwerksmessungen) geht auf eine bimodale Verteilung der Teilchengrößen zurück. Mit Ausnahme dieses letzten Punktes war die Anzahl-



**Abb. 6:** An einem Rolls-Royce Triebwerk und hinter einem Brennkammersegment gemessene mittlere Rußteilchendurchmesser (links) und Rußvolumenbrüche (rechts) in Abhängigkeit von der Triebwerksleistung.

konzentration der gemessenen Rußpartikel hinter dem Triebwerk und dem Brennkammersegment nahezu gleich. Bedingt durch die größeren Teilchen hinter der Brennkammer liegen bei ähnlicher Teilchenanzahlkonzentration die Rußvolumenbrüche (siehe Abb. 6 rechts) ebenfalls über denen des Triebwerks.

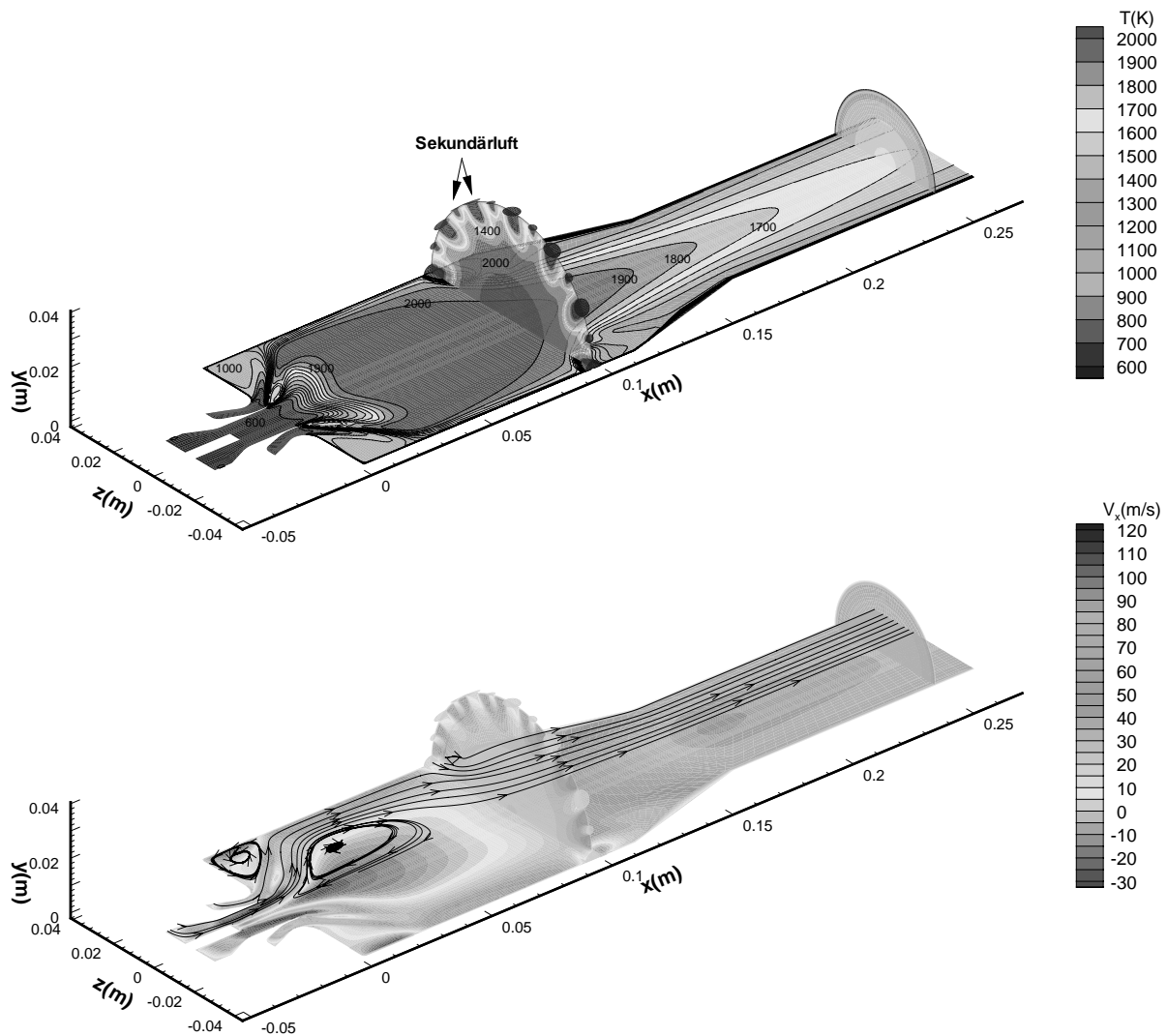
Um die Qualität solcher Rußpartikelmessungen beurteilen zu können, wurden Modellstudien mit einem bei VT entwickelten Rußgenerator durchgeführt. Damit konnten Leitungseffekte quantifiziert werden. Während solche Einflüsse in den dargestellten Ergebnissen unberücksichtigt sind, gehen Bestrebungen dahin, durch Quantifizierung von Leitungseffekten Rückrechnungen auf die am Messort tatsächlich anzutreffenden Partikeldurchmesser zu ermöglichen. Die Modellstudien haben eine starke Abhängigkeit des Fehlers von der Partikelgröße aufgezeigt.

#### Arbeitspaket 4: Erstellung eines modularen Rußberechnungsmoduls

Das Arbeitspaket 4 befasst sich mit der Übertragung der in den anderen Arbeitspaketen erarbeiteten Erkenntnisse auf dreidimensionale Verbrennungssimulationen. Dies ist nur möglich, indem in Bezug auf die umfangreiche Reaktionskinetik der Rußbildung und in Hinblick auf die Modellierung der Turbulenz Vereinfachungen getroffen werden.

Parallel dazu sind auch einfache eindimensionale Modellstudien zur Rußbildung und zur Schwefelchemie in Flugtriebwerksbrennkammern angestellt wurden. Grundlage hierzu war eine 3D-Simulation der PAZI-Brennkammer. Die Gaszusammensetzung an einem charakteristischen Punkt kurz hinter der Dralldüse wurde als Startpunkt der eindimensionalen Simulation gewählt. Der Temperaturverlauf der 1D-Rechnung entspricht dabei dem einer Stromlinie der entsprechenden 3D-Simulation. Auf diese Weise ist es möglich, auch sehr umfangreiche Reaktionsmechanismen zu verwenden. Im Rahmen einer solchen Rechnung ist neben der Rußentstehung und -oxidation auch die Schwefelchemie berücksichtigt worden.

Um Verbrennung (basierend auf detaillierter Chemie) und Rußbildung in dreidimensionalen Simulationen einzubeziehen, kommt ein Flamelet-Ansatz zum Einsatz. Bei diesem wird der thermochemische Zustand des Gases als Funktion von Streckungsrate und Mischungsbruch in Tabellen abgelegt. Die Gültigkeit dieses Ansatzes setzt voraus, dass der Verbrennungsablauf



**Abb 7:** THETA-Code-Simulation der PAZI-Modellbrennkammer. Berechnete Verteilung der Temperatur (oben) sowie der  $u$ -Geschwindigkeitskomponente (unten) und Stromlinien des Geschwindigkeitsfeldes (unten).

im Vergleich zu den strömungsmechanischen Vorgängen schnell erfolgt. Bei der Rußbildung ist das nicht der Fall, weshalb an Stelle des Rußzustands Rußquellterme in den Tabellen abgelegt werden. Ein wesentlicher Punkt dieser Vorgehensweise liegt daher in der Erzeugung von Flamelet-Tabellen (für Kerosin) die auch die benötigten Quellterme (für Teilchenneubildung, Koagulation, Oxidation usw.) enthalten. Im CFD-Code wird dann eine Gleichung für den Rußvolumenbruch gelöst, deren Quellterme für einen gegebenen Mischungsbruch und eine Streckungsrate den Flamelet-Tabellen entnommen werden. Der Vorteil dieses Ansatzes liegt darin, dass die Erstellung der Flamelet-Tabellen mit detaillierter Chemie, umfangreichem Reaktionsmechanismen und komplexen Methoden zur Rußmodellierung erfolgen kann. Die Arbeiten des AP4 gliedern sich somit in zwei Teile:

- Umbauten im THETA-Code (Einbau einer Transportgleichung für den Rußvolumenbruch und Einbau eines assumed-PDF-Ansatzes zur Mittelung der Rußquellterme in Hinblick auf turbulente Fluktuationen),
- Erstellung erweiterter Flamelet-Tabellen für Kerosinverbrennung.

Insbesondere beim zweiten Arbeitspunkt haben sich Schwierigkeiten ergeben, wodurch sich die Durchführung dreidimensionaler Simulationen verzögert. Die Flamelet-Tabellen werden über die Simulation zahlreicher eindimensionaler Gegenstromdiffusionsflammen erzeugt, für welche im Post-Processing der Ruß berechnet wird. Bei der Kerosin-Verbrennung mit GRI-Mechanismus war das Programm zur Flamelet-Erzeugung nicht zu stabilisieren, was vermutlich an der Steifigkeit des Gleichungssystems lag. Durch Übergang auf einen anderen Reaktionsmechanismus ließ sich dieses Problem schließlich beheben. Inzwischen ist es gelungen, erste Gegenstromdiffusionsflammen mit einem umfangreichen Kerosin-Mechanismus zu simulieren und das bei VT erstellte Rußberechnungsprogramm im Post-Processing darauf aufzusetzen. Durch Variation der Streckungsraten werden auf diese Weise die benötigten Tabellen erzeugt. Diese Arbeiten sind momentan im Gange, werden sich aber vermutlich noch bis Ende Juli hinziehen.

Dagegen sind die Arbeiten am THETA-Code nahezu abgeschlossen. Die Transportgleichung für den Rußvolumenbruch wurde implementiert. Zur Berechnung turbulenter Strömungen dient ein assumed PDF-Ansatz, bei dem für den Mischungsbruch eine  $\beta$ -Verteilung vorgegeben wird, deren Struktur sich aus dem mittlern Mischungsbruch und dessen Varianz ergibt. Für die Berechnung gemittelter Rußquellterme ist ein analoges Vorgehen geplant. Um den dafür erforderlichen Rechenaufwand in Grenzen zu halten, werden die Verteilungen der Rußquellterme (für gegebene Streckungsraten) als Funktionen des Mischungsbruch ebenfalls durch  $\beta$ -Funktionen angenähert. Dies hat den Vorteil, dass bei der Berechnung von Mittelwerten damit keine numerische Integration mehr erforderlich ist, da hierfür eine analytische Lösung existiert.

Mit Hilfe des THETA-Codes wurde die Auslegung der am HBK-S untersuchten PAZI Modellbrennkammer unterstützt. So wurde beispielsweise der Einfluss unterschiedlicher Strategien zur Sekundärlufteinblasung untersucht und die Auslegung einer verbesserten Modellbrennkammer beeinflusst. Abbildung 7 zeigt Resultate der Simulationen einer Brennkammer mit verbessertem Kühlungskonzept. Dargestellt ist die berechnete Temperaturverteilung (oben) sowie die Geschwindigkeitsverteilung (x-Geschwindigkeitskomponente und Stromlinien unten). Bei dieser Simulation wurde aus Genauigkeitsgründen auch der Injektor diskretisiert. Im Gegensatz zum vorangegangenen Brennkammerkonzept erfolgt die Sekundärlufteinblasung nun über eine größere Anzahl an Einblasöffnungen (große und kleine) wobei der gesamte Sekundärmassestrom jedoch ungefähr konstant blieb. Durch das neue Einblaskonzept konnte die Spitzentemperatur im hinteren Brennkammerteil herabgesetzt werden. Die im unteren Bild dargestellten Stromlinien zeigen das für Drallflammen typische Rückströmgebiet auf der Kanalachse. Die Simulation erfolgte für  $\text{CH}_4$ -Verbrennung, während den experimentellen Untersuchungen Kerosin zu Grunde lag. Nach Fertigstellung der erforderlichen Kerosin Flamelet-Tabellen werden diese Rechnungen unter Einbeziehung von Ruß wiederholt.

### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

#### Arbeitspaket 1:

Die Versuche zur Rußbildung (Meilenstein M1) sind im wesentlichen abgeschlossen. Zum Meilenstein M2 wurden nur Vorarbeiten durchgeführt.

Arbeitspaket 2:

Der Meilenstein M4 (Abschluss der Messungen im Hochdruckkanal) wurde erreicht.

Arbeitspaket 3:

Die Meilensteine M5 und M6 wurden verspätet erreicht.

Arbeitspaket 4:

Meilenstein M9 wurde im Rahmen einer Reaktorrechnung erfüllt. Die Meilensteine M8 und M10 stehen dagegen noch aus und werden voraussichtlich im Sommer 2003 erreicht. Eine Änderung des Finanzierungsrahmens ist nicht notwendig.

*Begründung für notwendige Änderungen*Arbeitspaket 1:

Der Aufwand zur Bereitstellung eines umfangreichen Datensatzes zur Rußbildung (Meilenstein 1) hat sich als beträchtlich höher erwiesen, als ursprünglich geplant. Hinzu kamen technische Gründe (defekte Geräte) die Zeit für Neukalibration erforderten, um eine hohe Präzision der Messdaten sicherzustellen. Gleichzeitig hat sich gezeigt, dass die am Coflame-Gehäuse vorgesehenen Untersuchungen nicht mit der geforderten Genauigkeit zu erzielen waren (Probleme bei der Einmischung des Oxidators). Daher wurden zum Meilenstein M2 nur Voruntersuchungen angestellt, die in ein geplantes Experiment in PAZI-2 münden sollen.

Arbeitspaket 3:

Durch das zweimalige Scheitern der Rolls Royce Brennkammertests beim DLR in Köln ist es zu Verzögerungen im Zeitplan gekommen. Inzwischen wurden die Brennkammertests nachgeholt und die Meilensteine M5 und M6 erreicht.

Arbeitspaket 4:

Insbesondere bei der Erstellung von Kerosin-Flamelet-Tabellen haben sich Verzögerungen ergeben. Diese hängen mit Instabilitäten des Simulationsprogramms, der Komplexität des Kerosin-Reaktionsmechanismus und Personalwechsel zusammen. Die Meilensteine werden weiter bearbeitet und voraussichtlich im Sommer 2003 erreicht.

*Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*Arbeitspaket 1:

Durch die erstmalige Kombination von Temperatur- und Rußkonzentrationsmessungen speziell unter Druck steht eine hervorragende Datenbasis zur Weiterentwicklung von kinetischen Modellen zur Verfügung. Die bisherigen Messergebnisse werden in der Arbeitsgruppe für kinetische Modellierung zur Validierung und Optimierung des Rußbildungsmodells verwendet.

Arbeitspaket 2:

Charakterisierung von 'Triebwerksruß' unter triebwerksrelevanter Bedingungen. Vergleich unterschiedlicher Partikelmesssysteme im praktischen Einsatz. Bereitstellung experimenteller Daten zum Testen von CFD-Codes zur Berechnung der Rußbildung in hochturbulenten Brennkammerströmungen unter Druck.



Arbeitspaket 3:

Die Messungen der Rußpartikel, Größenverteilungen und Anzahlkonzentrationen an realen Brennkammern sind Voraussetzung zur Validierung von Rußmodellen mehrdimensionaler Simulationsverfahren. Darüber hinaus bilden sie Eingangsdaten für das Klimamodell ECHAM.

Arbeitspaket 4:

Weiterentwicklung der Rußmodellierung mittels null- und eindimensionaler Programme. Erzeugung von Flamelet-Tabellen mit Rußquelltermen, mit beliebigen mehrdimensionalen Programmpaketen (auch kommerziellen) auf Flamelet-Basis koppelbar. Untersuchung des Flamelet-Ruß-Ansatzes in realitätsnahen Brennkammern unter hohem Druck.

*Relevante Ergebnisse Dritter*

Keine wesentliche Veränderung gegenüber der Antragstellung.

*Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

- Noll, B., R. Kessler, P. Theisen, H. Schütz, M. Aigner, S. Hohmann: *Flow Field Mixing Characteristics of an Aero-Engine Combustor - Part II: Numerical Simulations*, AIAA paper 2002-3708, 2002.
- Kunz, O., B. Noll, R. Lückcrath, M. Aigner, S. Hohmann: *Computational Combustion Simulation for an Aircraft Model Combustor*, AIAA paper 2001-3706, 2001.
- C. Wahl, A. Döpelheuer, M. Aigner: *Determination of Quantities and Properties of Aircraft Engine Generated Soot*, 5<sup>th</sup> International ETH-Conference on Nanoparticle Measurement, 6<sup>th</sup>- 8<sup>th</sup> August 2001 ETH Zürich.
- K.P. Geigle, Y. Schneider-Kuehnle, V. Krueger, M. Tsurikov, M. Braun-Unkhoff, W. Stricker, M. Aigner: *Validation of the Kinetic Soot Model: Theoretical and Experimental Study on Soot Formation using LII and Shifted Vibrational CARS*, Beitrag auf Konferenz „Aviation, Atmosphere and Climate“, 2003.
- K.P. Geigle, Y. Schneider-Kühnle, V. Krüger, M. Tsurikov, R. Lückcrath, M. Braun-Unkhoff, N. Slavinskaya, P. Frank, W. Stricker, M. Aigner: *Soot Concentrations and Temperatures for the Soot Model Validation using Laser-based Diagnostics: LII and Shifted Vibrational CARS*, European Combustion Meeting“, Orleans, Oktober 2003. (diese Ergebnisse sollen auch in einen Journal-Artikel einfließen)
- V. Krüger, K.P. Geigle, W. Stricker, M. Aigner: *Soot particle size measurements with laser-induced incandescence: validation of the signal interpretation model in flames*, in Vorbereitung.
- C. Wahl, V. Krüger, M. Aigner: *Is ICAO Smoke Number just a Number?* ETH- Nanoartikel-Konferenz, 2002.
- C. Wahl, M. Aigner: *Aircraft Gas Turbine Soot Emission Tests under Technical Relevant Conditions in an Altitude Test Facility and Validation of Soot Measurement Technique*, Paper Number GT 2003-38797, ASME 2003.
- C. Wahl, M. Kapernaum, V. Krüger, P. Rainer, M. Aigner: *Determination of soot mass fraction, soot density and soot fractal character in flame exhaust gases*, AAC Konferenz, Friedrichshafen, 2003.
- C. Wahl, M. Kapernaum, M. Aigner, *Validation of Soot Measurement Technique*. 7<sup>th</sup> International ETH-Conference on Combustion Generated Particles, Zürich, 2003.
- C. Wahl, V. Krüger, M. Aigner: *Vorrichtung und Verfahren zur kontrollierten Erzeugung von Nano-Rußpartikeln*, Patentanmeldung: Amtl. Aktenzeichen 102 43 307.0, 2002.

*Laufende Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

EU-Projekte: PartEmis, SiA

### 3.1.2 Rußemissionen auf realen Flugmissionen

Fachkoordination Dr. H. Kruse, DLR-AT  
Zuordnung TP1 - Rußemissionen und Aerosolvorläufergase

#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

##### Arbeitspaket 1: Messungen an realen Brennkammern

Für die im Rahmen des Projektes durchgeführten Brennkammermessungen sind die einzustellenden Betriebspunkte ermittelt und mit Rolls-Royce Deutschland abgesprochen worden. Anschließend wurde die erste Messkampagne im Hochdruckbrennkammerprüfstand 2 des DLR durchgeführt. Die Messungen mussten allerdings vorzeitig abgebrochen werden, da untypisch hohe Smoke Number Werte und Partikelgrößenverteilungen mit unerwartet großen Mittelwerten gemessen wurden. Eine Untersuchung seitens Rolls-Royce Deutschland ergab, dass 2 der 5 Pilot-Düsen irrtümlich ohne Durchfluss-Restriktoren montiert waren. Die durchgeführten Rußmessungen sind nicht zu verwenden. Rolls-Royce Deutschland hat sich daraufhin bereit erklärt, eine zweite Messung zu ermöglichen.

Die zweite Messkampagne musste wegen Problemen bei der Kühlung des Brennkammerriggs vorzeitig abgebrochen werden. Es konnte daher nur eine Messung mit dem Scanning Mobility Particle Sizer bei den Betriebsbedingungen  $p_3 = 4,73$  bar,  $T_3 = 485$  K und AFR = 87 durchgeführt werden. Der sich unter diesen Bedingungen ergebende geometrische Mittelwert der Partikelgrößenverteilung betrug 26 nm bei einer geometrischen Standardabweichung von 1,54. Dies sind unter den eingestellten Teillastbedingungen durchaus typische Ergebnisse. Seitens Rolls-Royce Deutschland ist eine dritte Messkampagne im Sommer 2002 zugesagt worden. Diese Messkampagne ist schliesslich im November 2002 erfolgreich durchgeführt worden.

##### Arbeitspaket 2: Auswertung und Analyse der Brennkammermessungen

Dieses Arbeitspaket konnte nicht wie geplant begonnen werden, da aus oben genannten Gründen keine Messergebnisse aus den Brennkammerversuchen vorlagen. Allerdings wurden im Arbeitspaket 2 Ergebnisse aus der frei zugänglichen Literatur für das Arbeitspaket 3 ausgewertet und analysiert. Die Auswertung der schließlich erfolgreichen dritten Messkampagne ist abgeschlossen.

##### Arbeitspaket 3: Korrelationsanalyse charakteristischer Rußparameter

Der Zusammenhang zwischen der Smoke Number und der Rußkonzentration wurde durch experimentelle Ergebnisse aus der verfügbaren Literatur abgesichert. Ferner sind Höhenprüfstandsversuche Dritter hinsichtlich der Änderungen des Rußaerosols im Verlauf von Flugmissionen analysiert worden. Dies betrifft sowohl die Rußmasse, als auch die Partikelgrößenverteilung.

Ferner ist im Berichtszeitraum ein Modell zur rechnerischen Abschätzung der Partikelgrößenverteilung und der gesamten Oberfläche des Rußaerosols aus Flugtriebwerken erstellt worden. Dabei wird von der durch Messungen gestützten Annahme ausgegangen, dass die Aerosolkollektive log-normalverteilt sind und sich daher durch nur drei Parameter (der Anzahlkonzentration, dem geometrischen Mittelwert und der geometrischen Standardabweichung) beschreiben lassen. Die wesentlichen Einflussgrößen auf diese drei Parameter der Partikelgrößenverteilung sind die Größen Druck und Temperatur am Brennkammereintritt sowie die Ruß-Massenkonzentration am Brennkammeraustritt. Zur Bestimmung der Partikelanzahl wird die Dichte des Rußes benötigt. Diese wird mit einem Modell für die durchmesserabhängige

Porosität der Partikel berechnet, welches auf Erkenntnissen aus der verfügbaren Literatur basiert. Die Oberfläche des gesamten Partikelkollektivs schließlich wird mit einem einfachen, vom Durchmesser der Einzelpartikel abhängigen Modell abgeschätzt. Details zu diesem Modell wurden im Rahmen einer Dissertation veröffentlicht.

#### Arbeitspaket 4: Rußemissionen der derzeitigen Flotte auf definierten Missionen

Das Verfahren zur Ermittlung der Flottenemissionen ist zur Berücksichtigung von Ruß erweitert und die zugrundegelegte Luftfahrzeugflotte aktualisiert worden. Die orts-, höhen- und zeitabhängige Veränderung der Eigenschaften des Aerosols aus Flugzeugtriebwerken wurde mit dem Verfahren berechnet, die Ergebnisse wurden zur weiteren Verwendung an die Partner übermittelt.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Das Arbeitsprogramm ist weitgehend eingehalten worden, lediglich die Messkampagne ist durch das zweimalige Scheitern in den November 2002 verschoben worden. Daher konnten die Datensätze der Brennkammermessungen (M3) erst verspätet bereitgestellt werden. Die darauf aufbauenden Arbeitspunkte haben sich entsprechend nach hinten verschoben.

Im einzelnen wurden im Rahmen des Projektes die Betriebspunkte für die Brennkammermessungen ermittelt, drei Messkampagnen am Brennkammerprüfstand durchgeführt, die Grundlagen zur Ermittlung der Rußemissionen der derzeitigen Flotte geschaffen und zwei Jahresberichte erstellt.

Die Korrelationsanalyse charakteristischer Rußparameter (geplant für Quartal 1 / Jahr 3) wurde durch das Scheitern der beiden ersten Messkampagnen nicht gefährdet, da der dritte Versuch im November 2002 erfolgreich verlaufen ist. Die Korrelationsanalyse der charakteristischen Rußparameter ist inzwischen auf anderen zur Verfügung stehenden Daten basierend durchgeführt worden.

Durch die Verschiebung der Messkampagne ergeben sich Abweichungen im Finanzierungsplan.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Begründung für die Änderungen ist das zweimalige Scheitern der Brennkammermesskampagne.

#### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Die bisher erstellten Korrelationen für die Rußparameter ermöglichen die näherungsweise Übertragung von einzelnen Brennkammer- und Triebwerksmessungen auf die derzeitige Luftverkehrsflotte. Die Ergebnisse der Messungen ermöglichen die weitere Verbesserung und Validation der Korrelationen sowie eine Präzisierung der bisher erhaltenen Ergebnisse.

#### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Im Berichtszeitraum sind keine neuen relevanten Veröffentlichungen bekannt geworden. Allerdings werden weiterhin verwandte Themen wie „potentielle Gesundheitsgefährdungen im Flughafennahbereich“ und „neue Messverfahren zur Triebwerkszertifizierung nach ICAO“ verstärkt diskutiert.

### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

#### Erfolgt:

Plohr, M., Döpelheuer, A., Lecht, M., The Gas Turbine Heat Cycle and its Influence on Fuel Efficiency and Emissions, Paper 34 in " Gas Turbine Operation and Technology for Land, Sea and Air Propulsion and Power Systems ", RTO MP-34, AC/323(AVT)TP/14, 2000

Döpelheuer, A., *Aircraft Emission Parameter Modelling*, Dossier "Aviation and the Environment" in Air & Space Europe, Editions Elsevier, ISSN 1290-0958, May - June 2000

Döpelheuer, A., Wahl, C., *Determination of Quantities and Properties of Aircraft Engine Generated Soot*, Paper published in "Aviation, Aerosols, Contrails and Cirrus Clouds (A2C3), Proceedings of a European Workshop, Seeheim, Germany, July 10-12, 2000, Air Pollution Research Report 74, EUR 19428, European Commission, Brussels, 2000"

Döpelheuer, A., *Quantities, Characteristics and Reduction Potentials of Aircraft Engine Emissions*, SAE No. 2001-01-3008, Proceedings of the 2001 Aerospace Congress, September 10-14, 2001

Döpelheuer, A., *Anwendungsorientierte Verfahren zur Bestimmung von CO, HC und Ruß aus Luftfahrttriebwerken*, Dissertation, DLR-Forschungsbericht 2002-10, DLR Institut für Antriebstechnik, Köln, 2002

Hendricks, J., Kärcher, B., Döpelheuer, A., Feichter, J., Lohmann, U., *Global model studies on the contribution of air traffic to the black carbon budget of the tropopause region*, EGS-AGU-EUG Joint assembly, Nice, April 2003

#### Geplant:

Englischsprachige Veröffentlichung weiterer Ergebnisse aus der Dissertation Döpelheuer

### *Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

EU-Projekte NEPAIR, PARTEMIS, CYPRESS, AERO2K

### 3.1.3 Spektrale Rußcharakterisierung

Fachkoordination Dr. A. Petzold, DLR-PA  
 Zuordnung TP1 – Rußemissionen und Aerosolvorläufergase

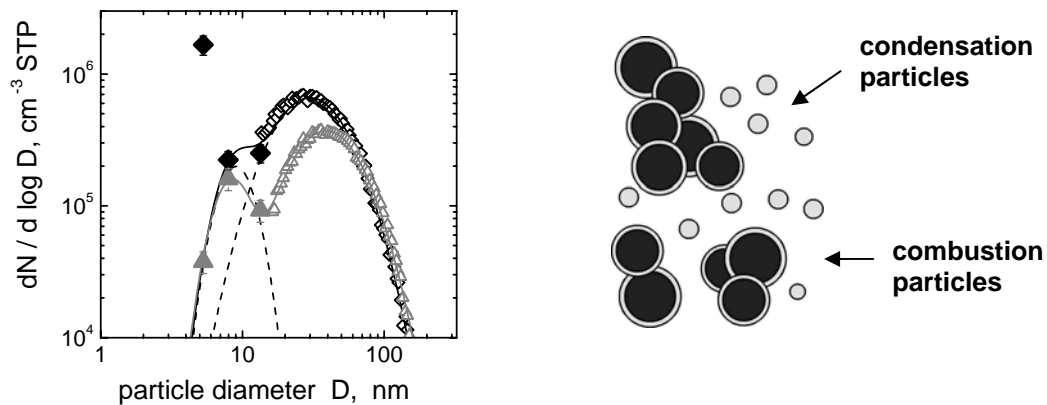
#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

Die Auswertung der im Rahmen von PartEmis durchgeführten Messungen wurde abgeschlossen. Im Projekt konnten die mikrophysikalischen und chemischen Eigenschaften des aus einer Triebwerksbrennkammer emittierten Aerosols sehr genau untersucht werden. Die Untersuchungen wurden an einer Brennkammer mit und ohne nachgeschaltetem Turbinensimulator (Hot End Simulator, HES) durchgeführt. Neben der reinen Charakterisierung des Aerosols bezüglich Größenverteilung, Mischungs- und Aggregatzustand (flüssig oder fest) wurden die Einflüsse der Betriebsbedingungen der Brennkammer und des Schwefelgehalts des verwendeten Treibstoffs auf die Aerosoleigenschaften untersucht.

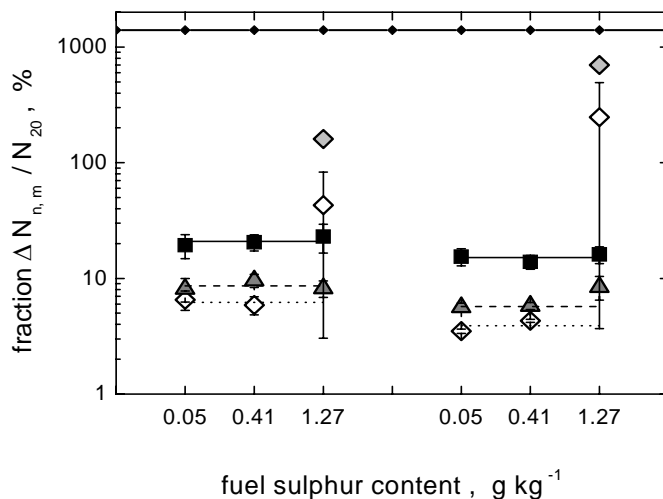
Die erzielten Ergebnisse lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- 1/ Das aus einer Brennkammer emittierte Aerosol besteht aus kohlenstoffhaltigen Verbrennungspartikeln, die im Verbrennungsprozess entstehen und flüssigen Kondensationspartikeln, die sich im abkühlenden Abgas bilden, siehe Abbildung 1; Partikel  $< 10$  nm tragen maximal 10% zur Gesamtanzahl des kohlenstoffhaltigen Verbrennungsaerosols bei, während die Anzahl von Kondensationspartikel bis zu 14 mal höher sein kann als die Anzahl der Verbrennungspartikel, siehe Abbildung 2.
- 2/ Mittlere Partikelgröße und Massen- sowie Anzahlemissionsindex des Verbrennungsaerosols werden kaum durch den Schwefelgehalt des Treibstoffs beeinflusst. Eine höhere Brennkammereintrittstemperatur (modern condition) führt zur Bildung von etwas größeren Partikeln verglichen mit Partikeln, die bei niedrigeren Eintrittstemperaturen (old condition) entstehen, siehe Abbildung 3.
- 3/ Die Eigenschaften des Verbrennungsaerosols werden im wesentlichen durch die Brennkammer festgelegt und durch einen nachgeschalteten Turbinensimulator kaum weiter verändert, siehe Abbildung 4.
- 4/ Die mittlere Partikeldichte liegt bei  $0.95 \text{ g cm}^{-3}$ , die spezifische Oberfläche eines aus volumenäquivalenten Kugeln bestehenden Aerosols liegt bei ca.  $80 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ .
- 5/ Flüssige Kondensationspartikel bilden sich ausschließlich bei der Verwendung von Treibstoff mit einem Schwefelgehalt von  $1.28 \text{ g kg}^{-1}$ , hier allerdings sowohl bei der Betriebsbedingung mit niedriger als auch bei der mit hoher Brennkammereintrittstemperatur, siehe Abbildung 2, Größenklasse 4 –7 nm.
- 6/ Flüssige Kondensationspartikel wachsen unter den im trockenen verdünnten Abgas vorherrschenden Bedingungen auf eine Maximalgröße von 15 nm an. Das Aerosol im Größenbereich  $D \geq 20$  nm ist vollständig intern gemischt.
- 7/ Das Bildungspotential für flüssige Kondensationspartikel steigt während des Transports des Abgases durch eine der Brennkammer nachgeschalteten Turbinensimulator. Hinter dem Turbinensimulator bilden sich doppelt so viele Kondensationspartikel pro Verbrennungspartikel wie hinter der Brennkammer.
- 8/ Im Abgas konnten ultrafeine Kohlenstoffpartikel ( $D < 20$  nm) in einer separaten Aerosolmode nachgewiesen werden, siehe Abbildung 1; der Anteil ultrafeiner Partikel am Kohlenstoffaerosol ist unabhängig vom Schwefelgehalt im Treibstoff.
- 9/ Emissionsindizes für Partikelanzahl und Partikelmasse sind für Betriebsbedingungen mit niedriger Brennkammereintrittstemperatur höher als für solche mit hoher Brennkammereintrittstemperatur, siehe Abbildung 3.

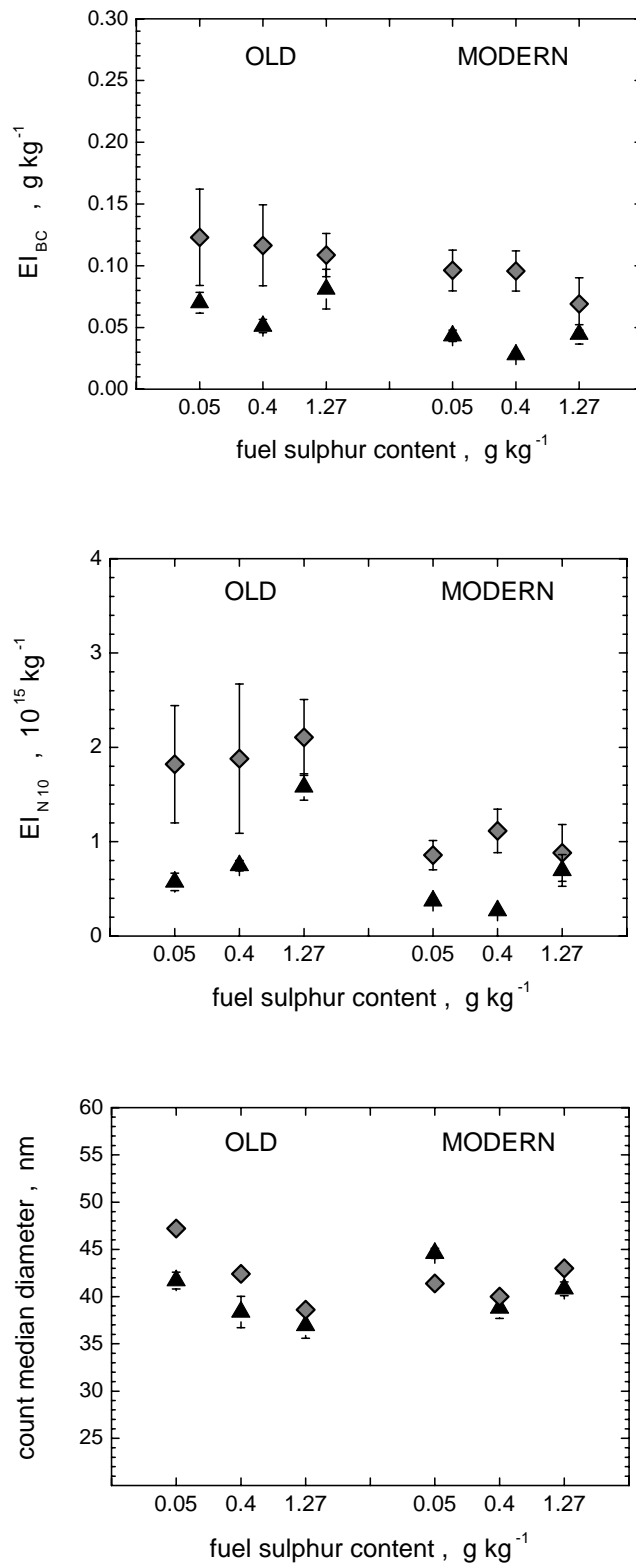
10/ Der der Brennkammer nachgeschaltete Turbinensimulator hat keinen weitergehenden Einfluss auf die Emissionseigenschaften des Gesamtsystems.



**Abbildung 1.** Links: Größenverteilung des Verbrennungsaerosols mit (Rauten) und ohne (Dreiecke) Bildung flüchtiger Partikel. Die gestrichelten Kurven zeigen Vorläufer- und ausgebildete Moden an. Rechts: Externes Aerosolgemisch bestehend aus flüchtigem (volatile condensation particles) und nicht-flüchtigem Anteil (nonvolatile combustion particles).

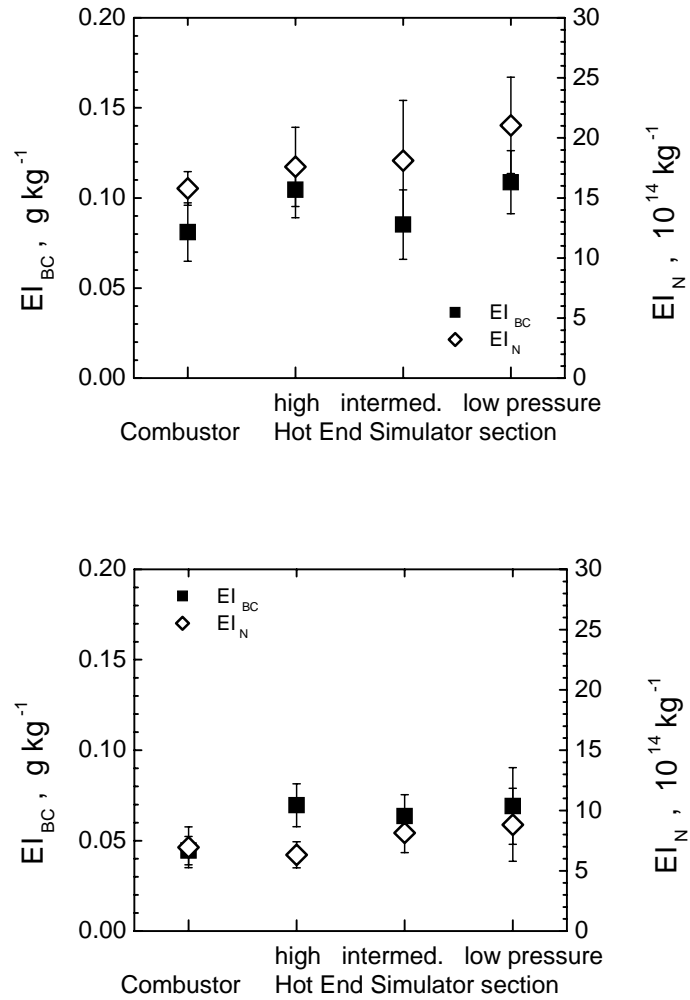


**Abbildung 2.** Verhältnisse der Konzentrationen von Partikeln der Größe 4 –7 nm (offene Rauten), 7 – 9 nm (Dreiecke), und 9 – 20 nm (Quadrate) relativ zum Verbrennungsaerosol mit Durchmessern  $D > 20$  nm als Funktion des Schwefelgehaltes im Treibstoff.



**Abbildung 3:** Emissionsindizes für die Masse des schwarzen Kohlenstoffes (oben) und deren Anzahlkonzentration (mitte), sowie der Mediandurchmesser des Verbrennungsaerosols (unten) am Brennkammerausgang (Dreiecke) und der Niederdrucksektion des HES (Rauten). Werte sind für beide Betriebsbedingungen gezeigt.





**Abbildung 4:** Einfluß des HES Druckes auf die Emissionsindizes des Verbrennungsaerosols für alte (oben) und moderne (unten) Triebwerke mit hohem Schwefelgehalt im Treibstoff.

### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Die Arbeiten liegen im Antrag angegebenen Zeitplan.

### *Begründung für notwendige Änderungen*

Es fallen keine Änderungen an.

### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Eine Vergleichsstudie der während PartEmis eingesetzten Messmethoden zur Charakterisierung des Emissionsaerosols ist in eine Empfehlung für zukünftig anzuwendende Partikelmesstechniken bei der Zulassung von Flugzeugtriebwerken eingeflossen. Diese Empfehlungen werden vom SAE E-31 Komitee erarbeitet und als Aerospace Information Report AIR 5892 veröffentlicht.

### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Keine.

### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Veröffentlichung der Resultate in mehreren Beiträgen in Geophysical Research Letters (Manuskripte eingereicht).

### *Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

EU-Projekt PartEmis (measurement and prediction of emissions of aerosols and gaseous precursors from gas turbine engines), contract no. G4RD-CT-2000-00207 (Laufzeitende 31/03/2003).

### 3.2 Eisbildung in der Atmosphäre

#### 3.2.1 Gefriermessungen in der Aerosol-Wolkenkammer AIDA

Fachkoordination Dr. O. Möhler, FZK-IMK-3  
 Zuordnung TP2 – Eisbildung in der Atmosphäre

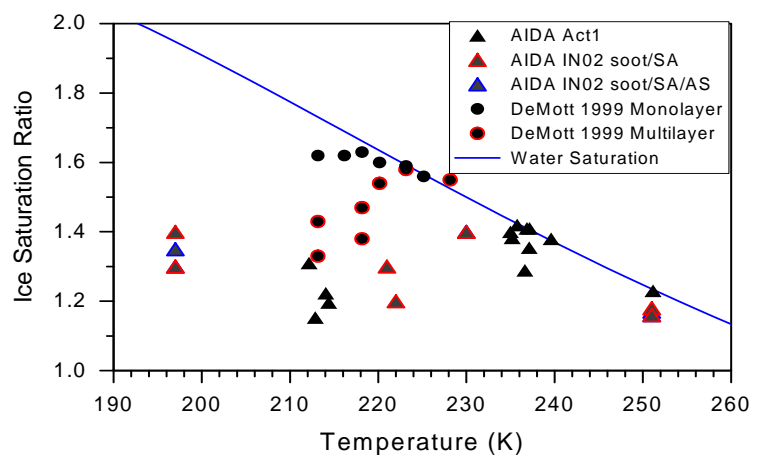
##### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

In diesem Einzelprojekts werden in einer Reihe von Simulationsexperimenten in der AIDA-Aerosolkammer die eisbildenden Eigenschaften von Aerosolpartikeln verschiedener Zusammensetzung und Oberflächen-Beschaffenheit bei typischen Umgebungsbedingungen in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre untersucht.

Die Arbeiten im dritten Projektjahr, die im Folgenden beschrieben werden, konzentrierten sich dem Arbeitsplan folgend auf (1) die weitere Auswertung der Eisnukleationsexperimente, die in den ersten beiden Projektjahren durchgeführt wurden (in Zusammenarbeit mit EP4.1), (2) die Durchführung weiterer Eisnukleationsexperimente, vor allem mit Rußpartikeln und mineralischen Partikeln, die mit Schwefelsäure beschichtet wurden, (3) den Einfluss der Restrukturierung von Russpartikeln auf optische Eigenschaften sowie (4) den Aufbau eines Standardgenerators (CAST) für die definierte und reproduzierbare Erzeugung von Verbrennungsruss. Erste Experimente zu den eisbildenden Eigenschaften der Verbrennungsrusspartikel sollen in einer Messkampagne im Juli dieses Jahres durchgeführt werden.

Alle Simulationsexperimente wurden an der kühlbaren und evakuierbaren Aerosolkammer AIDA des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt. Nach Erzeugung eines Eisfilms auf der Innenwand der Kammer herrscht bei konstanter Temperatur zunächst ein Sättigungsverhältnis  $S_{\text{Eis}} \approx 1,0$  im Volumen. Durch kontrolliertes Abpumpen wird eine rasche Abkühlung und damit Eisübersättigung im Volumen erzeugt, die durch verdampfendes Eis von der Wandbeschichtung verstärkt wird.  $S_{\text{Eis}}$  errechnet sich dabei aus zeitlich hoch aufgelösten Messungen der Wasserkonzentration mit dem L-Hygrometer FISH des Forschungszentrum Jülich (Zusammenarbeit mit EP2.4) sowie dem Sättigungspartialdruck von Wasser über Eis, der sich aus der aktuellen Gastemperatur im Aerosolbehälter ergibt. Bei Überschreiten eines kritischen Verhältnisses  $S_{\text{krit}}$  bilden sich spontan Eiskristalle, die, je nach Temperatur und Wasserpartialdruck, schnell wachsen und anhand der Intensität und des Depolarisationsgrades von rückgestreutem Laserlicht mit hoher Empfindlichkeit und zeitlicher Auflösung detektiert werden. Eispartikel mit einem Durchmesser  $D > 1,0 \mu\text{m}$  werden zudem von einem optischen Partikelzähler gemessen. Der optische Partikelzähler liefert die Anzahlkonzentration der sich bildenden Eispartikel, die mit der Gesamtzahl der Aerosolpartikel verglichen werden kann.

Nebenstehende Abbildung zeigt die im Temperaturbereich 196 - 251 K gemessenen  $S_{\text{krit}}$  für frische, unbehandelte Russpartikel aus einem Graphitfunkengenerator (schwarze Dreiecke), und Russpartikel, die vor Einleiten in den Aerosolbehälter mit Schwefelsäure beschichtet wurden (schwarze Dreiecke mit rotem Rand). Bei T

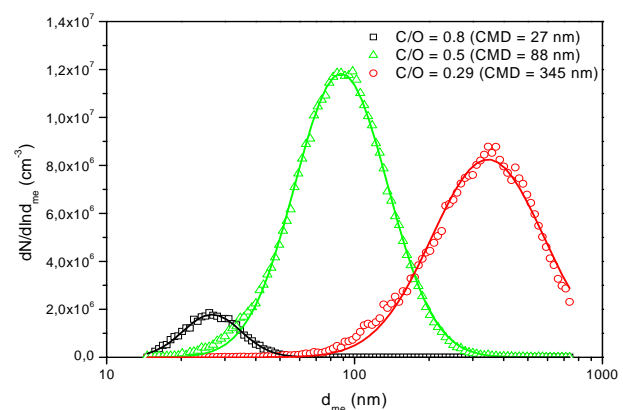
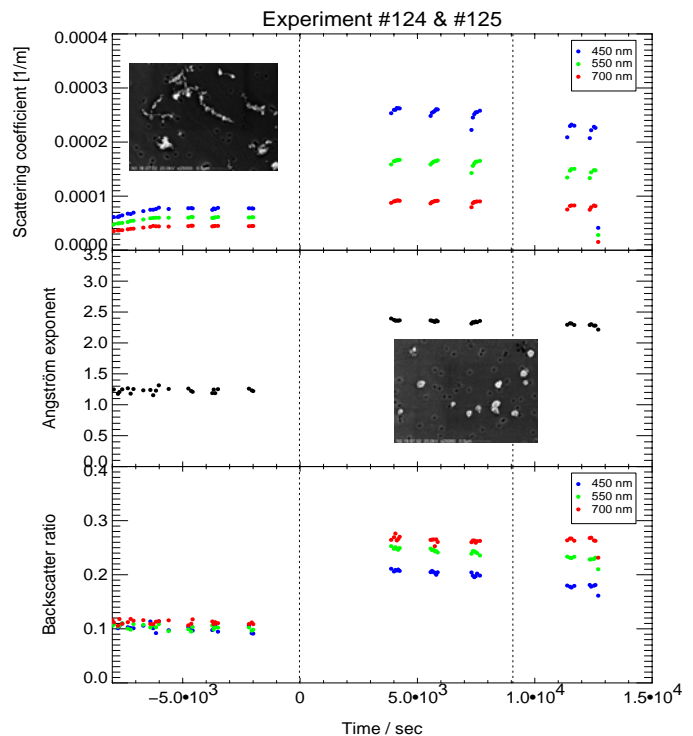


> 235 K bildet sich Eis erst bei Erreichen der Wassersättigung (durchgezogene blaue Linie), möglicherweise durch gefrierendes Wasser, das zunächst auf den Russpartikeln kondensiert (Kondensationsgefrieren). Zwischen 230 und 212 K zeigen die AIDA-Experimente Eisnukleation bereits bei deutlich kleinerem  $S_{krit}$  als die Ergebnisse von DeMott et al. (1999) für redispersierten Degussa-Ruß mit „monolayer“ (schwarze Kreise) und „multilayer“ (schwarze Kreise mit rotem Rand) Schwefelsäurebeschichtung.

Bei einigen AIDA-Experimenten wurde nach der ersten Eisaktivierung die Schwefelsäurebeschichtung der Russpartikel durch Zugabe von Ammoniak in den Aerosolbehälter vollständig neutralisiert und in Ammoniumsulfat umgewandelt. Anschließend wurde erneut die Eissättigung durch kontrolliertes Pumpen erhöht und die Eisbildung gemessen (schwarze Dreiecke mit blauem Rand). Die bisherigen Ergebnisse zeigen für Russaerosole aus einem Graphitfunkengenerator keine signifikante Änderung von  $S_{krit}$  nach Beschichtung mit Schwefelsäure und Ammoniumsulfat. Die Rußpartikel hatten mobilitätsäquivalente Durchmesser zwischen 0.05 und 0.5  $\mu\text{m}$ . Erste Experimente mit mineralischen Partikeln (Arizona Test Dust) bei  $T > 220$  K zeigen Eisbildung bereits bei  $S_{krit} < 1.2$ , sowohl für trockene Partikel als auch nach Beschichtung mit Schwefelsäure und Ammoniumsulfat. Weiter Experimente mit Mineralstaub bei  $T < 220$  K sind ebenfalls für Juli geplant.

In einigen Experimenten wurden im Bereich 200 bis 1000 nm Aerosolextinktionsspektren sowie bei den drei Wellenlängen 450, 550 und 700 nm Streukoeffizient und Rückstreuverhältnis gemessen. Nebenstehende Abbildung zeigt den zeitlichen Verlauf von Streukoeffizienten, daraus berechnetem Angströmemponenten und Rückstreuverhältnissen für ein Experiment mit frisch erzeugtem Rußaerosol bei einer Temperatur von 245 K. Zu Beginn des Experiments sind alle Werte, bedingt durch die fraktalartige Agglomeratstruktur der Russpartikel, relativ klein. Zum Zeitpunkt  $t=0$  wurden durch eine schnelle Expansion nahezu alle Russpartikel bei Wasserübersättigung aktiviert und bildeten spontan Eiskristalle. Die Elektronenmikroskopaufnahmen zeigen, dass sich die fraktalen Partikel dabei in deutlich kompaktere Strukturen umwandeln. Dies führt zu einer signifikanten Zunahme von Streukoeffizient, Angströmemponenten und Rückstreuverhältnissen. In weiteren Experimenten soll untersucht werden, inwieweit Eisnukleation bei tieferen Temperaturen, z.B. durch Depositionsgefrieren, derartige Auswirkungen auf die Partikelstruktur und damit die optischen Eigenschaften hat.

Für die Erzeugung von Flammenruß wurde ein so genannter CAST-Brenner (von Car-



bon Aerosol Standard) aufgebaut, der z.B. mit variablen Propan-Sauerstoff-Gemischen betrieben werden kann. Die mittlere Größe der Russpartikel kann durch Wahl des C/O-Verhältnisses systematisch in einem weiten Bereich verändert werden (siehe Abbildung). Der Gehalt der erzeugten Russpartikel an organischem und elementarem Kohlenstoff wird mit einem thermographischen Standardverfahren gemessen (VDI 2465). Bei künftigen AIDA-Experimenten soll dieser Ruß verwendet werden, um den Einfluss von Strukturveränderungen und Beschichtung mit anorganischem und organischem Material auf optische und eisbildende Eigenschaften zu untersuchen.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Der Arbeitsplan für das dritte Projektjahr wurde weitgehend eingehalten. Erste Eisnukleationsexperimente mit Verbrennungsruß sind für Juli dieses Jahres geplant.

**M4:** Erste Experimente zum Einfluss von Alterungseffekten durch Schwefelsäurebeschichtung und Neutralisierung der Schwefelsäureschicht mit Ammoniak wurden wie oben beschrieben durchgeführt. Die Auswertung und Interpretation der Experimente ist noch nicht vollständig abgeschlossen.

**M5:** Eisnukleationsexperimente mit mineralischen Partikeln wurden bereits durchgeführt. Nach Abschluss der Vorarbeiten mit dem neuen CAST-Generator für die kontrollierte Erzeugung von Verbrennungsruß sind erste Eisnukleationsexperimente mit Verbrennungsruß für Juli 2003 geplant. Die abschließenden Ergebnisse werden allerdings erst nach Ende des PAZI-Projektzeitraums zur Verfügung stehen.

**M6, M7:** Bei den optischen Eigenschaften wurde insbesondere der Einfluss der Kompaktierung fraktaler Partikel auf deren optische Eigenschaften untersucht.

**M8, M9:** Die Erstellung der Projektberichte erfolgt nach Plan.

In der Zusammenarbeit mit dem Einzelprojekt 4.1 „Prozessmodellierung Aerosole und Zirren“ wurden im dritten Berichtsjahr die grundlegenden Arbeiten zur homogenen Eisnukleation abgeschlossen und publiziert (Haag et al., 2003; Möhler et al., 2003). Entsprechende Auswertungen und Interpretationen der Experimente zur heterogenen Eisnukleation stehen, wie ursprünglich erwartet, zum jetzigen Zeitpunkt erst am Anfang und sollen einen Schwerpunkt des Nachfolgeprojekts PAZI-2 bilden.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Nach Einstellung des Kerosinbrenner-Projekts zugunsten der Anschaffung eines CAST-Brenners auf Grund praktischer Erwägungen (siehe letzter Jahresbericht) können die Experimente mit Verbrennungsruß erst zum Ende des Projektzeitraums durchgeführt werden. Die Ergebnisse werden also erst nach Ende des PAZI-Projektzeitraums zur Verfügung stehen. Umfangreiche AIDA-Experimente zu den eisbildenden und optischen Eigenschaften von Verbrennungsruß sollen einen Schwerpunkt des Nachfolgeprojekts PAZI2 bilden. Die Ergebnisse des EP 2.2 konnten auf Grund der Verzögerung bei den Flugzeugmessungen bislang nicht wie ursprünglich vorgesehen in die Planung der AIDA-Experimente einbezogen werden.

### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Die Ergebnisse sind grundlegend für die Bewertung, welche Aerosoleigenschaften die heterogene Eisnukleation bei Zirrenbedingungen in der oberen Troposphäre maßgeblich beeinflussen. Die AIDA-Datensätze dienen auch der Verifikation von Parametrisierungen der heterogenen Eisnukleation in Prozessmodellen, die im Rahmen von EP4.1 entwickelt werden.

#### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Ergebnisse anderer Gruppen, welche die Aussagekraft der hier erzielten Ergebnisse direkt betreffen oder beeinflussen, sind uns nicht bekannt.

#### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Möhler, O., O. Stetzer, S. Schaefers, C. Linke, M. Schnaiter, R. Tiede, H. Saathoff, M. Krämer, A. Mangold, P. Budz, P. Zink, J. Schreiner, K. Mauersberger, W. Haag, B. Kärcher, and U. Schurath, Experimental investigation of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 211-223, 2003.

Haag, W., B. Kärcher, S. Schaefers, O. Stetzer, O. Möhler, U. Schurath, M. Krämer, and C. Schiller, Numerical simulations of homogeneous freezing processes in the aerosol chamber AIDA, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 195-210, 2003.

Weitere Veröffentlichungen zur heterogenen Eisnukleation sind in Vorbereitung.

#### Konferenzbeiträge 2002/2003

- AMS Cloud Physics Conference, June 2002, Ogden, Utah.
- European Ozone Symposium, September 2002, Göteborg.
- EGSAGUEUG meeting, April 2003, Nizza.
- AAC Conference, Juli 2003, Friedrichshafen.

European Aerosol Conference, September 2003, Madrid.

#### *Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

Berührungspunkte gibt es zu den laufenden Drittmittel-Projekten CIPA (EU, bis Ende Juni 2003) und POSTA (BMBF, AFO2000, bis Ende Dezember 2003), die mit Feld-, Labor- und Modellstudien die Entstehung von polaren stratosphärischen Wolken (PSCs) untersuchen. Hierbei geht es u.a. um die homogene und heterogene Eisnukleation in unterkühlten Lösungströpfchen (z.B. supercooled ternary solution particles). Die Ergebnisse sind teilweise auch für den Tropopausenbereich und die obere Troposphäre von Bedeutung.

### 3.2.2 Partikelmessungen in Kondensstreifen und Zirren

Fachkoordination Dr. R. Busen, DLR-PA  
Zuordnung TP2 – Eisbildung in der Atmosphäre

#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

##### Messungen zur Eisübersättigung

Aufgrund der ungünstigen Wetterbedingungen in 2001 wurde im Okt 2002 parallel zu einer Kampagne in Norditalien erneut versucht, Situationen mit "sub visible cirrus (SVC) zu finden. Aufgrund der Erfahrungen aus früheren PAZI-Meßflügen wurden Frontalzonen senkrecht zum Verlauf der einhergehenden Bewölkung durchflogen.

Eine meteorologisch günstige Situation trat am 20 Oktober 2002 über Westdeutschland auf der Vorderseite eines Tiefs westlich von Großbritannien auf. Bei diesem Flug konnte in etwa 12.5-13.5 km Höhe über dem Flugweg ein optisch sehr dünner Zirrus beobachtet werden, der unter EP 2.3 näher beschrieben ist.

Bei einem weiteren Messflug während dieser Kampagne konnten mikrophysikalische Parameter in eisübersättigter Luft vermessen werden. Die Auswertungen dieser Messungen sind noch nicht abgeschlossen.

##### Nachlaufmessungen

Zur Vorbereitung der Messkampagne zur Untersuchung von Flugzeugaerosol im unmittelbaren Nachlauf von Flugzeugen und in großräumig belasteten Flugstraßen wurde im Anschluss an das PAZI-Statusseminar 2002 mit den beteiligten Gruppen die Instrumentierung und die Messstrategie abgesprochen. Erstmals wurde bei diesen Flügen ein Massenspektrometer der Firma Aerodyne verwendet. Dieses Gerät wird vom MPI für Chemie in Mainz aufgebaut und betreut.

Als weiteres neues Instrument wurde erstmals ein Differential Mobility Analyzer (DMA) eingesetzt, mit dem der bisher nicht abgedeckte Größenbereich von 30 - 150 nm abgedeckt werden kann.

Darüber hinaus wurden PMS-Spektrometer und Kondensationskernzähler, das FISH-Instrument für Wasserdampfmessungen (FZ Jülich) sowie ein "large ion mass spectrometer" (LIOMAS) und ein "Chemi-ion mass spectrometer" (CIMS) des MPI für Kernphysik, Heidelberg, eingesetzt.

Die Messungen wurden im Luftraum um München herum im April 2003 durchgeführt. Bei insgesamt 5 Flügen (1 technischer Flug und 4 Missionsflüge) konnten bei unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen verschiedene Flugzeugtypen verfolgt und außerdem Background-Verhältnisse in Luftstraßen vermessen werden. Die Auswertung der Messdaten hat gerade begonnen und wird im 2. Halbjahr 2003 vorhabensbezogen weitergeführt. Ein Treffen zum Vergleich der Daten und zur Abstimmung zum weiteren Vorgehen ist für Herbst 2003 vorgesehen.



### *Stand des Arbeits-und Finanzierungsplanes*

Die geplanten Arbeiten wurden durchgeführt, die Meilensteine wurden erreicht. Die Auswertung der Nachlauf-Messungen kann erst nach Abschluss von PAZI erfolgen.

### *Begründung für notwendige Änderungen*

Da die Kampagne zu Messungen im Nachlauf von Flugzeugen wegen Verzögerungen in der Geräteentwicklung erst kurz vor Ende der Projektlaufzeit durchgeführt werden konnte, sind die hauptsächlichlichen Auswertearbeiten erst im zweiten Halbjahr 2003, d.h. in der Vorhabensphase von PAZI, möglich.

### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Ziel dieser Kampagne war die Messung der Anzahldichte und Konzentration sowie die Bestimmung der chemischen Zusammensetzung des Aerosols im Nachlauf von Flugzeugen und in stark beflogenen Luftstraßen. Durch die speziell auf diese Zielsetzung ausgerichtete Instrumentierung ist jetzt vermutlich ein Datensatz vorhanden, der zur Verifikation von Modellen zur Aerosolbildung dienen und als Basis für weitere Versuche in Wolkenkammern dienen wird.

### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Keine.

### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Noch nicht definiert.

### *Laufende und geplante Drittmittelvorbaben im Zusammenhang mit PAZI*

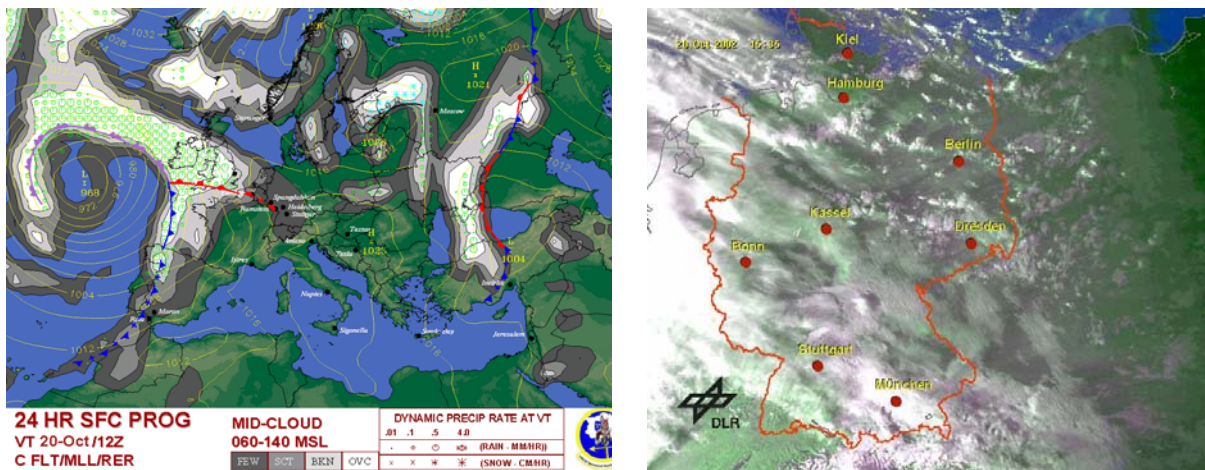
Keine.

### 3.2.3 Lidarmessungen von Kondensstreifen, Zirren und H<sub>2</sub>O

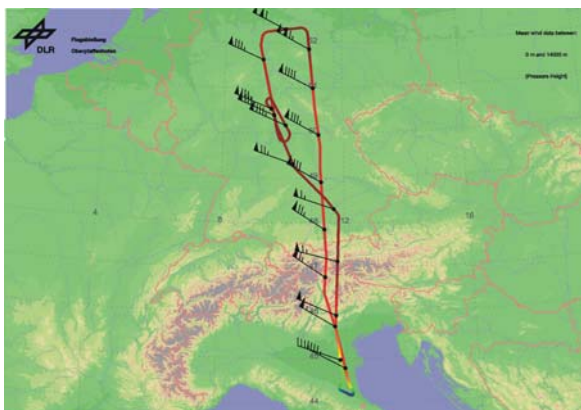
Fachkoordination Dr. H. Flentje, DLR-LI  
 Zuordnung TP2 – Eisbildung in der Atmosphäre

#### Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse

Aufgrund der ungünstigen Wetterbedingungen in 2001 wurde im Oktober 2002 in Norditalien erneut versucht, unsichtbare Zirren (SVC) zu finden. Mit den Erfahrungen aus den früheren PAZI-Meßflügen lag es nahe, Frontalzonen senkrecht zum Verlauf der einhergehenden Bewölkung zu durchfliegen. Eine solche Situation trat am 20. Oktober 2002 über Westdeutschland (Abb. 1a) auf der Vorderseite eines Tiefs westlich von Großbritannien auf. Der Tiefausläufer erreichte Deutschland mit einer geschlossenen Zirrusschicht etwa um 15 UTC (Abb. 1b), während die obere Troposphäre vor der Front weitgehend wolkenfrei, nur sporadisch von Zirren durchsetzt war. In diesem Gebiet wurde in etwa 12.5-13.5 km Höhe über dem Flugweg (Abb. 2) bei 51-52.5°N, 9-10°E ein optisch sehr dünner Zirkus ( $\gamma_{1064} \approx 1.5-5$ ,  $\gamma_{532} \approx 1.1-1.25$ ) beobachtet.



**Abb 1:** (a) Signifikantes Wetter am 20.10.02 12 UT mit Warmfront über Nordfrankreich.  
 (b) Rechts IR Satellitenbild (DFD) vom 20.10.02 15:35 UT



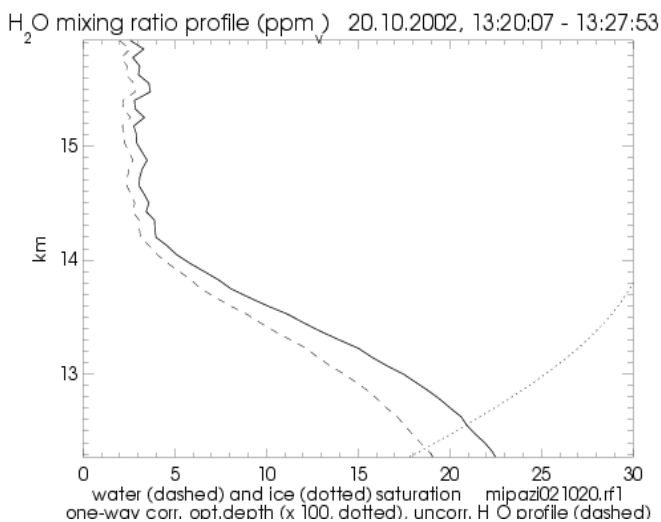
**Abb. 2:** Flugweg des H<sub>2</sub>O-DIALS am 20.10.02. Hellblau markiert die Region in der der SVC auftrat.

Dieser weist eine Volumen-Depolarisation  $\delta_{vol} \approx 5-10\%$  bei 532 nm auf (Abb. 3a, b) und ist verbunden mit oder scheint herauszuwachsen aus einer sich nach oben hin in die Stratosphäre fortsetzenden Aerosolschicht. Sehr ähnliche Zirrusschichten wurden 1999 mit dem Lidar über dem indischen Ozean nahe der tropischen Tropopause gemacht. Abb. 4 zeigt das über den Bereich des SVC gemittelte Wasserdampfprofil (dick) und die Sättigungskurven, die mit meteorologischen Standardprofilen für mittlere Breiten gerechnet wurden. In der Höhe des beobachteten SVC ist zwar keine Eissättigung vorhanden, jedoch war die Tropopause

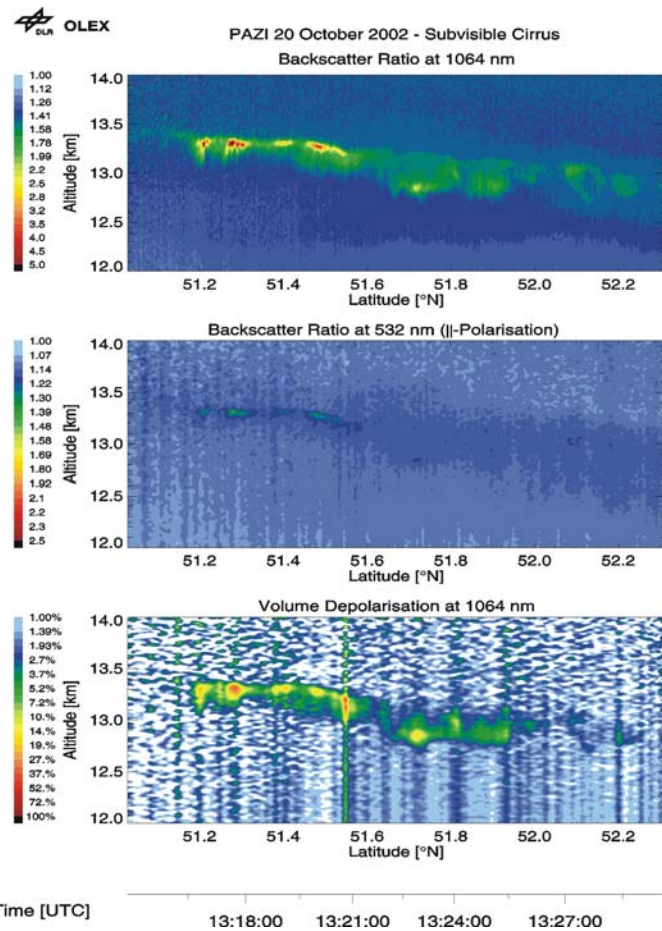
während der Messungen sehr hoch, wodurch das Eissättigungsprofil vermutlich um 1-2 km nach oben verschoben war. Die Übersättigung um den SVC soll in weiteren Untersuchungen geklärt werden.

Die Partikelgröße kann unter der Annahme von Wassereis mithilfe von vorberechneten T-Matrix Tabellen bestimmt werden. Aus den Rückstreuverhältnissen bei 1064 nm ( $\gamma \approx 1.7$ ) und 532 nm ( $\gamma \approx 1.15$ ) ergibt sich ein Farbverhältnis der Rückstreukoeffizienten  $\beta_{532}/\beta_{1064} = \beta_{\text{mol,vis}}/\beta_{\text{mol,IR}} * (\gamma_{532}-1)/(\gamma_{1064}-1) \approx 4$  in den optisch dünnen Bereichen der Wolke und  $\beta_{532}/\beta_{1064} \approx 2.5$  in den stärker rückstreuenden Teilen. Die Partikel-Depolarisation in den dünneren Teilen des Cirrus beträgt  $12 \pm 3$  % in den dichtesten Teilen zwischen  $51.2^\circ\text{N}$  und  $51.6^\circ\text{N}$  etwa  $25 \pm 5$  %. Weder hexagonale noch Kreiszyylinder sondern nur ellipsoide Partikel mit einem Aspektverhältnis  $> 0.8$  (eher oblat) und Radien zwischen  $0.8$ - $1.8$   $\mu\text{m}$  sind gemäß der T-Matrix Rechnungen im dünneren Teil des SVC zu finden. Ellipsoide treten auch in den relativ stark rückstreuenden Bereichen auf, wegen der höheren Depolarisation können diese etwas größer und asphärischer sein.

Bildung: In der kräftigen



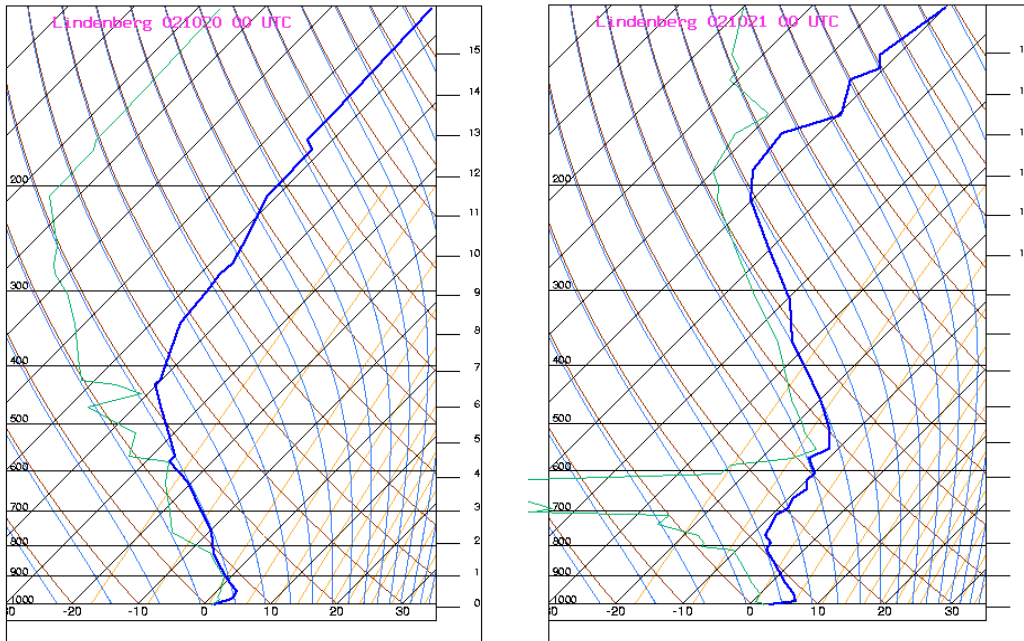
**Abb. 4:** Wasserdampf Konzentration gemessen mit dem H<sub>2</sub>O-DIAL im Bereich des SVC am 20 Okt. 2002.



**Abb. 3:** Sub-visible cirrus vom 20 Oktober 2002, gemessen bei  $52^\circ\text{N}$ ,  $9.5^\circ\text{E}$ .

nordwestlichen Strömung ( $> 50$  m/s) zwischen einem Tief über Skandinavien und einem Hoch über dem Mittelmeerraum floss am 20.10.02 eine in der Höhe recht feuchte, warme Luftmasse in den Messbereich ein. Dies zeigt der Vergleich der Radiosonden-Profile vom 20. und 21.10.02 aus Lindenberg. Hier zeigt sich, wie auch in Profilen anderer der Lidar-messung nahegelegener Stationen, eine deutlich ausgeprägte thermische Tropopause in der Höhe des SVC (13 km). Da nur geringe vertikale Windscherung auftrat, können auch Schwere-wellen im Lee der norddeutschen Mittelgebirge (ca. 700-1000 m ü.NN) an der Erzeugung der meso-

skaligen Struktur des Zirkus beteiligt sein. Deutlich ist die prä-frontale Hebung um ca. 500 m durch die im südlichen Bereich früher eintreffende maritime Luftmasse erkennbar.



**Abb. 5:** Radiosonden-Profile über Lindenberg vom 20. und 21.10.02 je 00 UT.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Durch das Ausscheiden der das Projekt bearbeitenden Doktorandin konnten die anvisierten Auswertungen nicht wie geplant durchgeführt werden. Die Daten der während der MIPAS-Validierung im Oktober 2002 durchgeführten PAZI Fluges sind jedoch vielversprechend und sollen in den kommenden Monaten eingehend untersucht werden.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Keine.

#### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Die folgende Auswertung der SVC Messungen könnte Aufschluß über Bildungsmechanismen von Eispartikeln geben und unterstützt die Planungen der Meßkampagnen CIRCLE, die für das Folgeprojekt PAZI-2 vorgesehen sind.

#### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Keine.

#### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Bei Verwertbarkeit Studien zum SVC mit dem MM5 Modell.

#### *Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

Keine.

### 3.2.4 In-situ-Messungen von Einzelpartikelkomposition und $H_2O$

Fachkoordination Prof. Dr. S. Borrmann, Univ. Mainz und MPI Chemie/ FZJ-ICG-1  
 Zuordnung TP2 – Eisbildung in der Atmosphäre

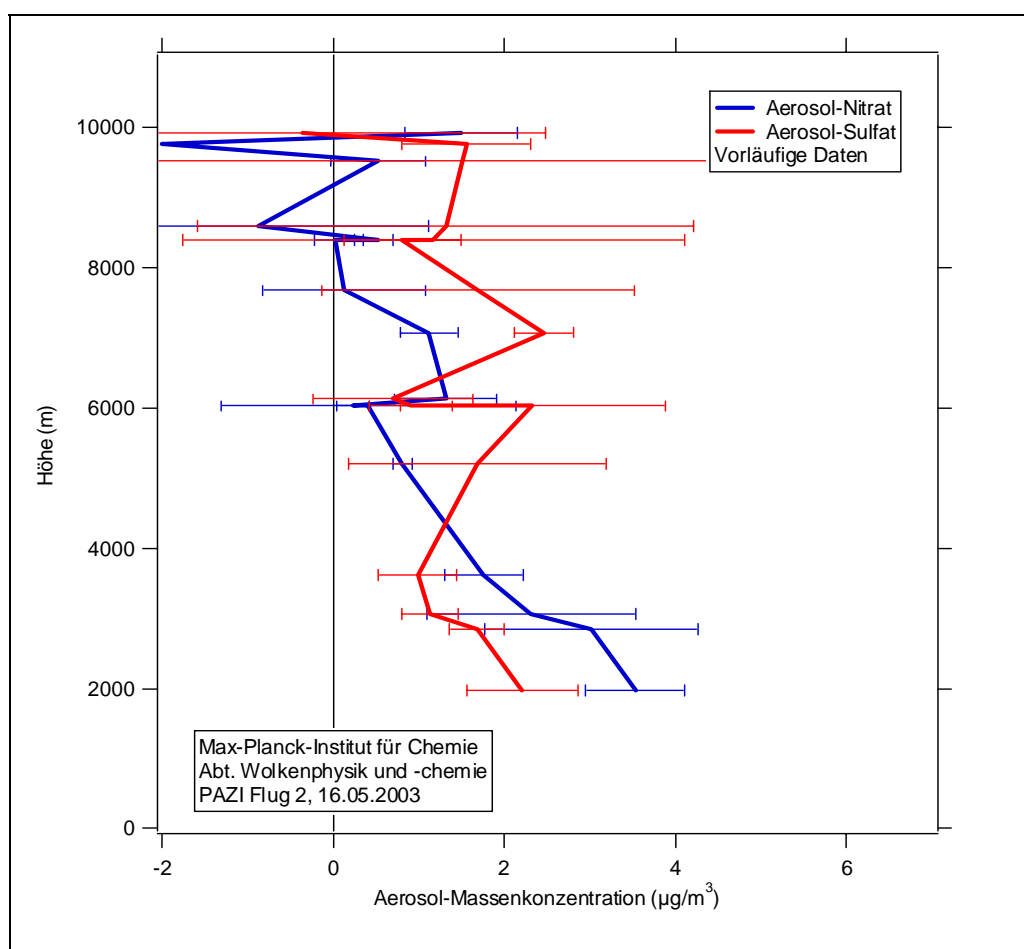
#### Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse

Das Aerosolmassenspektrometer AMS der Firma Aerodyne Inc. wurde im Mai 2003 erfolgreich auf dem Forschungsflugzeug Falcon des DLR eingesetzt. Diese Messungen sind die ersten mit diesem Massenspektrometertyp in der freien Troposphäre.

Während der Kampagne wurden 5 Flüge durchgeführt. In 4 der 5 Flüge konnten Daten gewonnen werden.

Ein Ziel der Kampagne war die Messung von Partikel im Abgas von Verkehrsflugzeugen. Die Auswertung der AMS-Daten zu diesem Thema ist noch nicht abgeschlossen, so dass zum jetzigen Zeitpunkt noch keine Ergebnisse hierzu genannt werden können.

Als erstes Ergebnis des Messungen können aber die Hintergrunddaten, insbesondere aus der Grenzschicht gezeigt werden. Die Höhenprofile für Aerosol-Sulfat und -Nitrat des zweiten Messflugs sind in Abbildung 1 dargestellt.



**Abb.1.** Höhenprofil der Aerosolkomponenten Nitrat und Sulfat am 16.05.2003.



Das AMS erfasst Aerosolpartikel in einem Größenbereich zwischen 50 und 1500 nm, also in der Akkumulationmode.

Die Konzentration von Aerosol-Nitrat in dieser Mode nimmt oberhalb von 3 km deutlich ab, und fällt dann in der oberen Troposphäre auf Werte nahe der Nachweisgrenze (siehe Streuung der Messwerte und Fehlergrenzen in Abb. 1). Das Aerosol-Sulfat nimmt weniger deutlich ab. Die Partikelneubildung aus der Gasphase in der feinen Troposphäre, aus der Schwefelsäure-Wasser-Aerosol entsteht, trägt somit mehr zum Hintergrundaerosol bei als der Transport von nitrathaltigen Aerosolpartikeln aus der Grenzschicht.

Die Auswertung von Ammonium und den organischen Aerosolbestandteilen ist noch nicht abgeschlossen und kann daher hier noch nicht präsentiert werden.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Der Arbeitsplan ist mit der Durchführung der letzten Messkampagne im Mai 2003 abgeschlossen.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Keine.

#### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Da diese Messungen die ersten mit dem Aerosolmassenspektrometer in der freien Troposphäre sind, sehen wir die Verwertbarkeit und den Nutzen als sehr groß an. Die Auswertung der Messdaten kann allerdings noch einige Monate in Anspruch nehmen.

#### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Wichtige neue Veröffentlichungen zum AMS:

Bahreini, R., J.L. Jimenez, J.T. Jayne, D.R. Worsnop, R.C. Flagan, and J.H. Seinfeld, Aircraft-based Aerosol Mass Spectrometer Measurements of Particle Size and Composition during ACE-Asia, *Journal of Geophysical Research – Atmospheres*, in press, 2003.

#### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Schneider, J., N. Hock, S. Henseler, and S. Borrmann, Ambient aerosol sampling using online mass spectrometry: Results from ground- and aircraft-based measurements, accepted for presentation at the European Aerosol Conference, Madrid, September 2003.

Schneider, J., J. W. Curtius, F. Drewnick, S. Henseler, B. N. Hock, S. Weimer, and S. Borrmann, Mass spectrometric aerosol composition measurements in the tropopause region, submitted to the AAAR Conference, Anaheim, CA, October 2003.

#### *Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

Abgasmessungen in PKW-Dieselabgas. Auftraggeber: Ford Forschungszentrum Aachen, Projektnehmer: Max-Planck-Institut für Chemie, Abt. Wolkenphysik und -chemie.

### 3.3 Aerosol-Zirren-Messungen

#### 3.3.1 INCA Feldmessungen

Fachkoordination Dr. R. Busen, DLR-PA  
 Zuordnung TP3 – Aerosol-Zirren-Messungen

#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

Das EU-Vorhaben INCA wurde im Februar 2002 abgeschlossen, ein Bericht über das zweite Projektjahr und ein zusammenfassender Abschlussbericht liegen vor. Die beiden Feldexperimente in Punta Arenas und in Prestwick sind auf der INCA-Homepage ausführlich dokumentiert, die Zwischen- und Abschlussberichte sind hier einzusehen, ebenfalls von dort erreicht man auch das Datenarchiv. <http://www.pa.op.dlr.de/inca/>

Die Auswertungen der Messungen wurden auch nach dem Projektende weitergeführt (Besonders EP 4.1). Dabei wurde die INCA Datenbank zur Auswertung der Falcon-Messungen von Vertikalwind und Temperatur und weiterer Partikelkenngrößen intensiv genutzt. Daraus sind einige Veröffentlichungen und Vorträge bei internationalen Tagungen entstanden.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Im letzten Projektjahr von PAZI wurden weitere Auswertearbeiten durchgeführt und Publikationen vorbereitet. Im Finanzierungsplan gibt es keine Änderungen.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Die Arbeiten wurden planmäßig und termingerecht durchgeführt, für Änderungen bestand kein Bedarf.

#### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Die Ergebnisse dieses EP sind eine wesentliche experimentelle Basis für den Projektantrag für PAZI-2.

#### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Im November/Dezember 2002 wurde in Darwin/Australien das Experiment EMERALD-2 durchgeführt. Hierbei wurde mit 2 Flugzeugen speziell die lokale tropische Konvektionszelle HECTOR untersucht, die sich in dieser Jahreszeit regelmäßig über den vorgelagerten Tiwi-Islands ausbildet.

Der Ausfluss dieser Gewitterzelle wurde mit einem nach oben gerichteten Rückstreu-Lidar auf einer Beech Kingair fernerkundet, die mikrophysikalischen Eigenschaften wurden mit der Egrett in situ vermessen. Ein erstes Meeting zum Vergleich der Daten fand statt, die Auswertung der Messergebnisse aus ungefähr 50 Flugstunden wird noch einige Zeit in Anspruch nehmen. Ergebnisse einer vorausgegangenen Kampagne wurden inzwischen publiziert:

Bradshaw, N.G., Vaughan, G., Busen, R., Garcelon, S., Jones, R., Gardiner, T., Hacker, J. (2002): Tracer filamentation generated by small-scale Rossby wave breaking in the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 107(D23), 4689, doi: 10.1029/2002JD002086, 2002.

*Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Baehr, J., H. Schlager, H. Ziereis, P. Stock, P. van Velthoven, R. Busen, J. Ström, and U. Schumann, Aircraft observations of NO, NO<sub>y</sub>, CO, and O<sub>3</sub> in the upper troposphere from 60°N to 60°S – Interhemispheric differences at midlatitudes, *Geophys. Res. Lett.*, 30 (11), 1598, doi:10.1029/2003GL016935, 2003.

Gayet, J.-F., F. Auriol, A. Minikin, J. Ström, M. Seifert, R. Krejci, and A. Petzold, G. Febvre, and U. Schumann. Quantitative measurement of the microphysical and optical properties of cirrus clouds with four different in situ probes: Evidence of small ice crystals. *Geophys. Res. Lett.*, 29, 2230, doi:10.1029/2001GL014342, 2002.

Minikin, A., A. Petzold, J. Ström, R. Krejci, M. Seifert, J. Baehr, H. Ziereis, H. Schlager, R. Busen, and U. Schumann. Interhemispheric differences in the properties of the upper tropospheric background aerosol. *J. Aerosol Science*, 32, Suppl. 1, S1043-S1044, 2001.

Minikin, A., A. Petzold, J. Ström, R. Krejci, M. Seifert, H. Schlager, P. van Velthoven, and U. Schumann. Aircraft observations of the upper tropospheric fine particle aerosol in the northern and southern hemispheres at midlatitudes. *Geophys. Res. Lett.*, 30 (10), 1503, doi:10.1029/2002GL016458, 2003.

Ovarlez, J. J.-F. Gayet, K. Gierens, J. Ström, H. Ovarlez, F. Auriol, R. Busen and Ulrich Schumann, Water vapour measurements inside cirrus clouds in Northern and Southern hemispheres during INCA, *Geophys. Res. Lett.*, 29 (16), 1813, doi:10.1029/2001GL014440, 2002.

Seifert, M., J. Ström, R. Krejci, A. Minikin, A. Petzold, J.-F. Gayet, U. Schumann, and J. Ovarlez, In situ observations of aerosol particles remaining from evaporated cirrus crystals: Comparing clean and polluted air masses, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1037–1049, 2003.

Seifert, M., J. Ström, R. Krejci, A. Minikin, A. Petzold, J.-F. Gayet, H. Schlager, H. Ziereis, U. Schumann and J. Ovarlez, Aerosol-cirrus interactions: A number based phenomenon at all?, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 3625–3657, 2003.

Seifert, M., J. Ström, R. Krejci, A. Minikin, A. Petzold, J.-F. Gayet, H. Schlager, H. Ziereis, U. Schumann and J. Ovarlez, Thermal stability analysis of particles incorporated in cirrus crystals and of non-activated particles in between the cirrus crystals: Comparing clean and polluted air masses, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 3659–3679, 2003.

Ström, J., M. Seifert, J. Ovarlez, A. Minikin, J.-F. Gayet, R. Krejci, A. Petzold, F. Auriol, R. Busen, U. Schumann, B. Kärcher, W. Haag, H.-C. Hansson, Cirrus cloud occurrence as function of ambient relative humidity: a comparison of observations from the Southern and Northern Hemisphere midlatitudes obtained during the INCA experiment, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 3301–3333, 2003.

*Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

Keine



### 3.3.2 Lidaranalyse von Zirren bei INCA

Fachkoordination Prof. Dr. O. Schrems, AWI-SPCA  
 Zuordnung TP3 – Aerosol-Zirren-Messungen

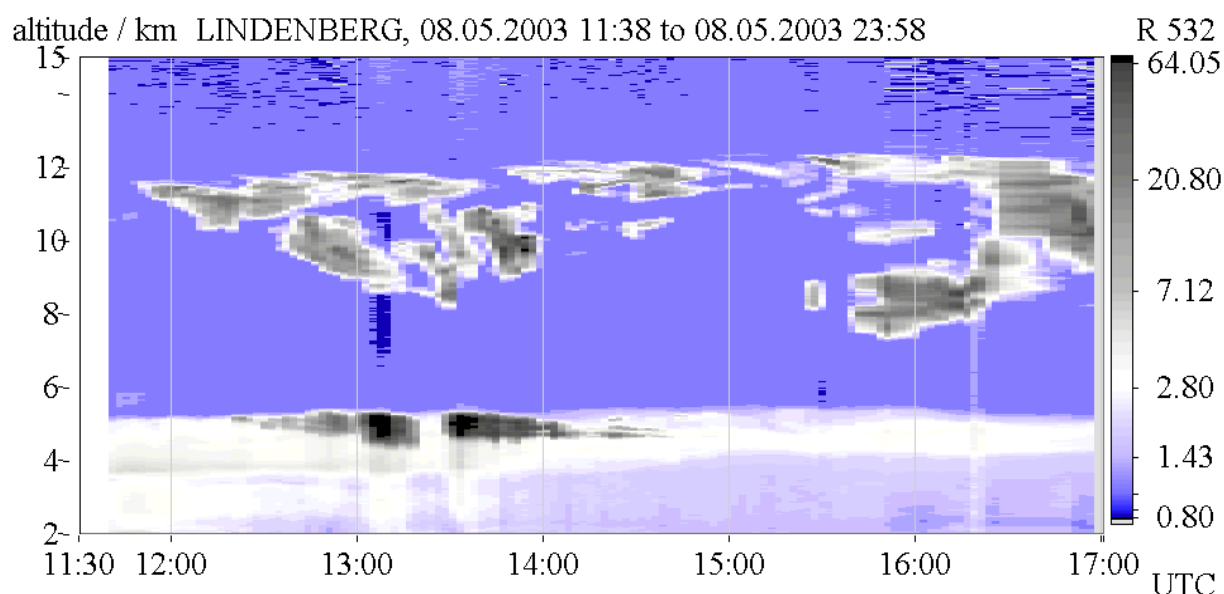
#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

Von April 2003 ab wurden Messungen mit dem Mobilten Aerosol Lidar (MARL) am Meteorologischen Observatorium Lindenberg (MOL, 53.5°N, 8.5°O) des Deutschen Wetterdienstes (DWD) durchgeführt (Meßkampagne Lindenberg).

Dabei werden in Zusammenarbeit mit dem DWD verschiedene Projekte zur Untersuchung der Wechselwirkung zwischen der Vertikalverteilung von Wasserdampf, Aerosolen und Wolken in mittleren Breiten und zum Zusammenhang zwischen der Variabilität von Wasserdampf und synoptischen Wettererscheinungen durchgeführt. Die meßtechnische Grundlage liefert hier insbesondere das mobile Aerosol-Raman-Lidar (MARL) des AWI.

Im Rahmen von Intensivmeßtagen werden mit diesem Instrument kontinuierliche Messungen durchgeführt. Das Augenmerk liegt dabei darauf, solche Wetterlagen zu untersuchen, die während der INCA-Kampagnen nicht genügend berücksichtigt werden konnten, sowie visuell identifizierte Kondensstreifen zu charakterisieren.

Darüber hinaus soll eine breite Basis von Lidardaten geschaffen werden, die zur Interpretation der INCA Daten und zukünftiger Messungen herangezogen werden kann.



**Abb. 1** Lidar-Messungen aus Lindenberg, Dargestellt ist das Rückstreuverhältnis bei 532 nm als Funktion von Zeit und Höhe. Die Wolke die zum etwa 14:30 in ein Höhe von ca. 12 km erscheint wurde visuell als ein aus einem Kondensstreifen hervorgegangener Zirrus identifiziert.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Die Arbeitspakete 1,2 und 3 wurden planmäßig abgearbeitet. Das Arbeitspaket 4, die Meßkampagne in Venezuela, konnte aus den weiter unten angegebenen Gründen bisher nicht durchgeführt werden.

Die Analyse der Daten, Arbeitspaket 5, ist bereits weit fortgeschritten und die Resultate wurden in mehreren Veröffentlichungen dargestellt.

Der Vergleich von mit den vom Lidar gemessenen Zirrusdaten mit solchen von satellitenge-tragenen Systemen (M10) erwies sich jedoch als nicht durchführbar. Ein Zirren-Ereignis, das gleichzeitig mit beiden System detektiert wurde, war nicht gegeben. Der Grund dafür ist die begrenzte Kampagnendauer während der INCA Kampagnen und der geringe Bereich der Überschneidung optischer Dicken, die mit beiden Systemen detektierbar sind: Während mit dem Lidar Wolken mit einer optischen Dicke größer als etwa 1 nicht mehr gemessen werden können, sind die in Betracht kommenden satellitenge-tragenen Systeme nicht in der Lage Wolken mit einer optischen Dicke von unter 0.5 zu detektieren.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Die vorgesehene Meßkampagne in Merida/Venezuela konnte bisher nicht durchgeführt werden, weil die seit dem Generalstreik vom Dezember 2002 verschärfte politische Situation in dem Land einen sicheren Aufenthalt der Wissenschaftler und ihre Versorgung nicht garantiert werden konnte.

#### Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse

Die zuletzt in Lindenberg gewonnenen Lidardaten dienen der Untersuchung von optischen Eigenschaften von Zirren und Kondensstreifen, sowie des meteorologischen Umfeldes in dem solche entstehen.

#### Relevante Ergebnisse Dritter

Keine.

#### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

##### Artikel

Immler F., O. Schrems, Vertical profiles, optical and microphysical properties of Saharan dust layers determined by a ship-borne lidar, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 2707-2737, 2003.

Immler F., A new algorithm for simultaneous ozone and aerosol retrieval from tropospheric DIAL measurements, *Appl Phys B* 76, 5, DOI 10.1007/s00340-003-1157-z, 593-596, 2003.

Immler F., O. Schrems, Lidar measurements of cirrus clouds in the northern and southern hemisphere during INCA (55°N, 53°S): A comparative study, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 10.1029/2002GL015077, 2002

Immler F., O. Schrems, Determination of tropical cirrus properties by simultaneous Lidar and radiosonde measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 10.1029/2002GL015076, 2002.

Immler F., O. Schrems, Comparison of the properties of cirrus clouds in the northern and southern hemisphere based on lidar measurements. Proceedings of the AAC, in Arbeit.

Poster und Vorträge:

Immler, F., Schrems, O.(2003). Subvisual cirrus clouds in the midlatitude and tropical tropopause region observed by lidar, EGU General assembly, Nice 2003.

Immler, F., Schrems, O.(2003). Vertical structure and microphysical properties of Saharan dust retrieved from shipborne lidar measurements, EGU General Assembly, Nice, 2003.

Immler, F., Schrems, O.(2003). Lidar Measurements of tropical subvisual cirrus (TSC) above the central Atlantic ocean, Lidar measurements in Latin America, Workshop, Camaguey, Cuba.

Immler, F., Schrems, O.(2003). Saharan dust events observed in the tropics and subtropics by a shipborne Aerosol Raman lidar, Lidar measurements in Latin America, Workshop, Camaguey, Cuba, 2003.

Immler, F., Schrems, O.(2003). Lidar measurements of tropical subvisual cirrus above the central Atlantic Ocean, Tropic Workshop at DLR Oberpaffenhofen, 2003.

*Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

Keine.

### 3.3.3 Satellitenfernerkundung von Zirren

Fachkoordination     Dr. P. Wendling, DLR-PA  
 Zuordnung            TP3 – Aerosol-Zirren-Messungen

#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

##### Mikrophysikalische und optische Eigenschaften von Zirren aus Satellitendaten

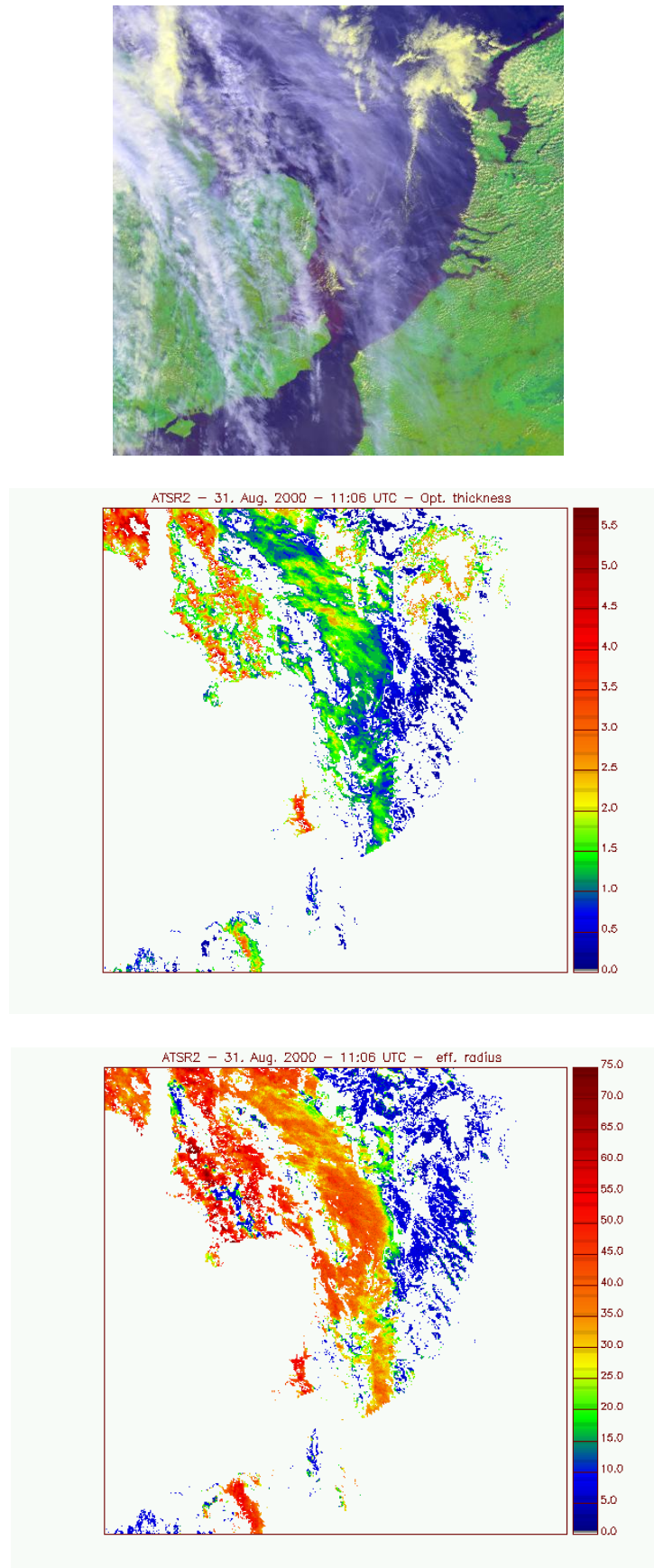
Das Ziel der beiden INCA- Kampagnen war die Bestimmung von Unterschieden der mikrophysikalischen Eigenschaften von Zirren auf der Nord- und Südhemisphäre. Zur Auswertung der während der Kampagnen gesammelten ATSR2- Daten wurde das APOLLO (AVHRR Processing Scheme over cLOUDs Land and Ocean) Verfahren auf die Verarbeitung von ATSR2- Daten speziell im Hinblick auf Zirren angepasst. APOLLO identifiziert verschiedene Wolkentypen und klassifiziert diese in der sog. Wolkenmaske. Im Rahmen von PAZI wurde ein neues Verfahren entwickelt, dass mikrophysikalische Eigenschaften für die als bewölkt klassifizierten Bildelemente ableitet.

Das neue Fernerkundungsverfahren verwendet Strahldichten der Spektralkanäle 0.8, 1.6  $\mu\text{m}$  für die Nadir-Beobachtungsgeometrie des ATSR2- Instruments und nutzt eine Regressions-technik, um aus dem Vergleich mit vorausberechneten Tabellen die optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften von Eiswolken abzuleiten. Die Methode basiert darauf, dass die Strahldichte im Spektralkanal 0.8  $\mu\text{m}$  vor allem von der optischen Dicke der Wolke abhängt, während die Strahldichte im Spektralkanal 1.6  $\mu\text{m}$  von der optischen Dicke und der Partikelgröße bestimmt wird. Zur Berechnung der optischen Eigenschaften der Eispartikel wurde die Parameterisierung von Key et al. (2002) verwendet.

Abbildung 1 zeigt die mit dem neuen Fernerkundungsverfahren abgeleitete optische Dicke und den Effektivradius der Eispartikel einer Zirruswolke über der Nordsee für den 31. August 2000. Das neue Verfahren ist zunächst auf Wolken über Wasser beschränkt, da die Bestimmung der optischen Eigenschaften von Zirren über Land aufgrund der Variabilität der Bodenalbedo mit größerer Unsicherheit behaftet ist und die Reflektivität des Bodens nicht genau bekannt ist. Die optisch dickeren Wasserwolken wurden maskiert und nicht ausgewertet.

Der Vergleich des Falschfarbenkomposits mit den Ergebnissen des Fernerkundungsverfahrens zeigt, dass die Zirren zum großen Teil richtig erkannt werden und die abgeleiteten optische Dicke der Wolkenstruktur folgt. Im Vorfeld einer Warmfront mit Lage über der Irischen See (vgl. Berliner Wetterkarte vom 31.08.2000 und 01.09.2000) kommt es zum Aufgleiten von Warmluft und zur Bildung von Zirren, die an Mächtigkeit in ost-westlicher Richtung zunehmen, was sich in einer entsprechenden Zunahme der optischen Dicke und des effektiven Radius widerspiegelt.

Durch das dargestellte Beispiel wird das Potential des neu entwickelten Fernerkundungsverfahrens in Zusammenspiel mit einer semioperationellen Prozessierung der ATSR2 Daten durch APOLLO deutlich. Da für die INCA Kampagne nur ATSR2 Daten außerhalb der Messflüge vorliegen und somit kein Vergleich mit in-situ Messungen aus der INCA Kampagne über Europa möglich ist, wird zur Validierung des Verfahrens ein Vergleich für Daten des CRYSTAL-FACE Experiments über Florida vorbereitet. Nach Abschluss des Vergleichs und der Implementierung des Verfahrens über Landoberflächen, können dann die ATSR2 Daten für die INCA Kampagne vollständig ausgewertet werden.



**Abb. 1:** Falschfarbenkomposit (oben), abgeleitete optische Dicke (Mitte) und effektiver Partikelradius (unten) von Zirruswolken am Beispiel des 31. August 2000 über der Nordsee. Wasserwolken und Landoberflächen wurden maskiert.

## Flugverkehr und Zirrusbewölkung über Europa

Der im Bericht 2001/2002 gezeigte starke Zusammenhang zwischen Flugverkehrsdichte und Zirrusbewölkung wurde mit weiteren Flugverkehrsdaten vom Herbst 2000 bestätigt. Sowohl das Verhältnis zwischen dem Flächenbedeckungsgrad an linearen Kondensstreifen und den vom Flugverkehr beeinflussten Zirren (~10) als auch die Abschätzung der Lebensdauer (Halbwertszeit ~ 2.5h) blieben mit den neu hinzugekommenen Daten gleich. Damit verlagert sich der dominierende Wirkungspfad des Einflusses des Luftverkehrs auf das Klima eindeutig in Richtung Zirrenbildung.

## Grundlegende theoretische Arbeiten

Zur Berechnung der Streu- und Absorptionseigenschaften von beliebig orientierten, hexagonalen Eissäulen und -plättchen wurde ein exaktes Verfahren entwickelt, das auf der Verallgemeinerung der Methode der Separation der Variablen basiert und besonders effektiv im Rayleigh- und Resonanzbereich arbeitet. Die Implementierung des Algorithmus ist abgeschlossen, FORTRAN 90 wurde als Programmiersprache gewählt. Der Algorithmus wurde erfolgreich für einen nicht im Koordinatenursprung liegenden kugelförmigen Streuer, der in mathematischen Sinne als nichtkugelförmiger Streuer mit bekannten Mie-Streueigenschaften gilt, verifiziert werden. Der Algorithmus ist nun auch in der Lage, hexagonale Partikel mit beliebiger räumlicher Orientierung zu behandeln und die Ergebnisse über alle Orientierungen zu mitteln. Erste, validierte Ergebnisse für diesen allgemeinen Fall liegen vor. Das Virtuelle Streulabor (<http://vl.nz.dlr.de>) wurde im Hinblick auf die Aufnahme dieses neuen Algorithmus erweitert.

## *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Die Arbeiten zur Erreichung des Meilensteins M6 (Analyse, Interpretation der Zirrus-Parameter für die INCA-Messungen auf der Nord- und Südhemisphäre) sind etwas im Rückstand, da die Arbeiten zur Analyse der Zunahme der Zirrenbewölkung über Europa aufgrund des Luftverkehrs einen gegenüber der Planung höheren Aufwand erforderte. Meilenstein 6 kann deshalb während der Laufzeit von PAZI nicht mehr erreicht werden, werden aber in der Übergangszeit zu PAZI-2 abgeschlossen. Die Meilensteine M1 bis M5 wurden erreicht.

## *Begründung für notwendige Änderungen*

Keine.

## *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Nach den bisher für Europa vorliegenden Ergebnissen scheint der Flugverkehr erheblich mehr als bisher angenommen zur Zunahme der Zirrenbewölkung beizutragen. Unsere Arbeiten liefern, nachdem sich die während des vorangegangenen Berichtsjahres gewonnenen Ergebnisse erhärtet haben, eine wichtige Grundlage für in Zukunft unter Umständen notwendige Regulierungsmaßnahmen in Zusammenhang mit dem wachsenden Luftverkehr.

Das vom IMF entwickelte Virtuelle Streulabor (<http://vl.nz.dlr.de>) sowie die von PA weiterentwickelte Strahlungstransport-Programmbibliothek (<http://www.libradtran.org>) erlauben über eine www-basierte Schnittstelle den Zugriff auf eine Reihe von Streu- und Strahlungstransportprogrammen und sprechen eine breite Nutzergemeinde an.

### *Relevante Ergebnisse Dritter*

- Stubenrauch et al., 1999, JGR 104, 31793
- Baran et al., 2001, Q. J. R. M. S., 2395
- Sherwood, 2002, JOC, 1051
- Key et al., 2002, JGR, 4181

### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Gonzales, A., P. Wendling, B. Mayer, J.F. Gayet, T. Rother, 2002: Remote sensing of multi-layer cirrus cloud properties using ATSR-2: A case study during INCA, J. Geophys. Res., 107, D23, 4693, doi:10.1029/2002JD002535, 2002

Mannstein, H. und P. Wendling, 2001: Untersuchungen zum Einfluß des Flugverkehrs auf die Cirrus-Bewölkung in Europa, Abschlußbericht des vom BMBF unter 07DLR08/2 geförderten Vorhabens

Mannstein, H.: Observations of contrails and cirrus over Europe and their climate impact, EGS-AGU-EUG Joint Assembly 2003, Nice

Mannstein, H.; Meyer, R.; Wendling, P. Satellite observations of contrails, EGS-AGU-EUG Joint Assembly 2003, Nice

Mannstein, H. and Schumann, U.: Contrail Cirrus over Europe, submitted to Nature

Schmidt, K., J. Wauer, and T. Rother, 2003: Application of the separation of variables method to plane wave scattering on non-axisymmetric dielectric particles. Proc. 12th International Workshop on Multiple Scattering LIDAR Experiments (MUSCLE 12), 10 - 12 September 2002, Oberpfaffenhofen, Germany, to appear in SPIE (2003)

### *Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

EU-Vorhaben CLOUDMAP-2

## 3.4 Aerosol-Zirren-Modellierung

### 3.4.1 Prozessmodellierung Aerosole und Zirren

Fachkoordination      Priv.-Doz. Dr. B. Kärcher, DLR-PA  
 Zuordnung              TP4 – Aerosol-/Zirren-Modellierung

#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

##### Arbeitspaket 1 - Modellweiterentwicklung

Das Arbeitspaket wurde im letzten Berichtsjahr abgeschlossen. Alle Meilensteine wurden erreicht. Eine detaillierte Modellbeschreibung ist in Bearbeitung. Teile des Modells (inklusive spezifischer Modifikationen) werden in der Dissertation von W. Haag beschrieben (liegt in der zweiten Hälfte 2003 vor).

##### Arbeitspaket 2 – Prozessstudien zu Gefriermessungen

**MS 5:** Die Simulationen zum Schwefelsäure-Aerosol wurden abgeschlossen. Die Ergebnisse der Modellstudien wurden parallel zu den experimentellen Befunden publiziert (Haag et al., 2003a; Möhler et al., 2003).

**MS 6 / 8:** Das Rußsystem wurde noch nicht systematisch untersucht, da sich die bislang vorliegenden Messungen in der AIDA noch in der Auswertung befinden und kein geschlossenes Bild ergeben. Jedoch können die gemessenen Gefrierfeuchten in die im Arbeitspaket 3 entwickelte Parameterisierung des heterogenen Gefrierprozesses eingebracht werden (Kärcher und Lohmann, 2003); siehe auch MS 8.

Falls sich bestätigt, daß Rußpartikel aus Flugzeugen unterhalb einer relativen Feuchte über Eis von etwa 130% gefrieren, sind signifikante Modifikationen der Zirrusbildung gegenüber rein homogener Bildung zu erwarten. Allerdings müßten die Rußpartikel in relativ hoher Anzahlkonzentration vorhanden sein ( $1-10 \text{ cm}^{-3}$ ), was nur nahe der Flugzeugquelle möglich ist.

**MS 7:** Das ternäre Schwefelsäure / Salpetersäure- / Wassersystem wurde mittels Prozessstudien untersucht. Auch hier konnte die von Koop et al. vorgeschlagene Parameterisierung der homogenen Nukleationsraten bestätigt werden.

**MS 8:** Es wurde eine einfache Parameterisierung der heterogenen Eisnukleation im Immersions- oder Depositionsmode vorgeschlagen (Kärcher und Lohmann, 2003). Diese beruht auf der Aktivitätsparameterisierung von Koop et al für homogene Nukleation. Heterogene Effekte werden durch eine Verschiebung der Wasseraktivität eingebracht. Die Größe der Verschiebung wird durch die relative Feuchte, bei der Gefrieren einsetzt, bestimmt. Anwendungen in ECHAM sind in Vorbereitung (Lohmann und Kärcher, 2003).

##### Arbeitspaket 3 – Prozessstudien unter atmosphärischen Bedingungen

**MS 9:** Es wurde gefunden, daß die in EP 2.2 und EP 2.3 bis Ende 2002 durchgeführten Messkampagnen nicht für Zwecke der Prozessmodellierung verwertbar sind. Die letzte in situ Kampagne fand nach technisch bedingten Verschiebungen im Zeitraum 12.-16 Mai 2003 und konnte nicht mehr im Berichtszeitraum verwertet werden.



**MS 10 / 11:** Diese wurden wie früher begründet in das EU-Projekt PARTS eingebracht. Über die Ergebnisse gibt der erste Zwischenbericht des PARTS Projektes Auskunft. Dieser ist unter <http://parts.dkrz.de/> abrufbar. Unter anderem wurde durch Interpretation der INCA Messungen gefunden, daß kleinskalige Temperaturfluktuationen einen signifikanten Einfluß auf die Bildung von Zirren und die Partitionierung von Spurengasen (z.B. HNO<sub>3</sub>) nehmen (Kärcher und Ström, 2003; Kärcher, 2003). Die bei INCA vorherrschenden hohen Kühlraten (~10 K/h) scheinen einen möglichen Einfluß von heterogenen Eiskernen auf die Zirrenbildung zu minimieren. Trotzdem wurde gefunden, daß die Nordhemisphäre während INCA Zeichen von „Verschmutzung“ im Aerosol aufweist, da die Zirrenbildung dort überwiegend bereits bei etwa 130% relativer Feuchte über Eis einsetzt (Haag et al., 2003b).

Als Ersatz zu MS 10 / 11 wurde in PAZI die Parameterisierung der Eisbildung für großskalige Atmosphärenmodelle eingebracht. Damit wurde eine Studie zur Auswirkung von starken Vulkaneruptionen auf Zirren mit ECHAM durchgeführt (Lohmann et al., 2003). Unter der Annahme, daß sowohl Hintergrundaerosol als auch das von Vulkanen stammende Aerosol homogen gefriert, konnte gezeigt werden, daß der Ausbruch des Pinatubo in 1991 höchstens eine sehr geringe Modifikation der Zirrusbewölkung und –eigenschaften bewirkt hat. Dies steht im Einklang mit jüngeren Auswertungen von Satellitendaten zur hohen Bewölkung. Ein Einfluß von Aerosolen aus Vulkanen auf optisch sehr dünne Zirren ist möglich (und wird durch SAGE II und HALOE Daten belegt), konnte aber wegen der für diese Untersuchungen unzureichenden Vertikalauflösung des globalen Modells noch nicht angegangen werden.

#### Arbeitspaket 4 – Berichte und Publikationen

Homepage zum Einzelprojekt mit Links auf unten genannte Berichte, Präsentationen, Artikel

- Kurzbeschreibung APSC Modell
- Protokolle von Arbeitssitzungen (teilw.)
- Präsentationsfolien Kick-Off Meeting am 24. Oktober 2000
- Präsentationsfolien Statusseminar am 13. Juni 2001
- Jahresbericht 2001
- Präsentationsfolien Statusseminar am 3./4. Juli 2002
- Jahresbericht 2002
- Präsentationsfolien Statusseminar am 25./26. Februar 2003
- Hauptvortrag und Proceedings AAC (Zusammenschau des Projektes PAZI 2000-2003)
- Endbericht 2003

#### Referierte Publikationen im Berichtszeitraum:

Kärcher, B. and U. Lohmann, 2002: A parameterization of cirrus cloud formation: Homogeneous freezing including effects of aerosol size. *J. Geophys. Res.* **107**, 4698, doi:10.1029/2001JD001429.

Haag, W., B. Kärcher, S. Schaefers, O. Stetzer, O. Möhler, U. Schurath, M. Krämer, and C. Schiller, 2003: Numerical simulations of homogeneous freezing processes in the aerosol chamber AIDA. *Atmos. Chem. Phys.* **3**, 195-210.

Möhler, O., O. Stetzer, S. Schaefers, C. Linke, M. Schnaiter, R. Tiede, H. Saathoff, M. Krämer, A. Mangold, P. Budz, P. Zink, J. Schreiner, K. Mauersberger, W. Haag, B. Kärcher, and U. Schurath, 2003: Experimental investigations of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA. *Atmos. Chem. Phys.* **3**, 211-223.

Kärcher, B. and U. Lohmann, 2003: A parameterization of cirrus cloud formation: Heterogeneous freezing. *J. Geophys. Res.* **108**, 4402, doi:10.1029/2002JD003220.

Lohmann, U., B. Kärcher, and C. Timmreck, 2003: Impact of the Mt. Pinatubo eruption on cirrus clouds formed by homogeneous freezing in the ECHAM GCM. *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2002JD003185, im Druck.

Kärcher, B. and J. Ström, 2003: The roles of dynamical variability and aerosols in cirrus cloud formation. *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 823-838.

Haag, W., B. Kärcher, J. Ström, U. Lohmann, J. Ovarlez, and A. Stohl, 2003: Freezing thresholds and cirrus cloud formation mechanisms inferred from in situ measurements of relative humidity. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **3**, 3267-3299.

Ström, J., M. Seifert, B. Kärcher, J. Ovarlez, A. Minikin, J.-F. Gayet, R. Krejci, A. Petzold, F. Auriol, R. Busen, U. Schumann, W. Haag, and H.-C. Hansson, 2003: Cirrus cloud occurrence as a function of ambient relative humidity: A comparison of observations from the Southern and Northern Hemisphere midlatitudes obtained during the INCA experiment, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **3**, 3301-3333.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Finanzierung gemäß Projektantrag.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Es wurden keine weiteren Änderungen vorgenommen.

#### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Prozessmodell APSC ermöglicht die Bearbeitung einer Vielzahl von Fragestellungen im Bereich der Physik und Chemie von Aerosolen und Zirren in der oberen Troposphäre und der unteren Stratosphäre.

Parameterisierung der Zirrenbildung durch homogenes Gefrieren ist von Nutzen für alle Simulationsmodelle von wolkenauflösender bis hin zur globalen Skala, inklusive ECMWF und Klimamodelle.

#### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Keine.

#### *Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Siehe oben.

#### *Laufende Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

PARTS (EU-Projekt: Particles in the Upper Troposphere and Lower Stratosphere and Their Impact on Climate, Bereichskoordination Workpackage 1: Influence of Atmospheric Variability on Particle Formation).

### 3 4.2 Wolkenauflösende Modellierung

Fachkoordination Dr. K. Gierens, DLR-PA  
 Zuordnung TP4 – Aerosol-Zirren-Modellierung

#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

Mit Hilfe der Methode der Überlappintegrale (siehe Ergebnisbericht 2001-2002) sind für ECHAM folgende Parametrisierungen des Bedeckungsgrades neu erstellt worden: a) für die Bildung von Zirren aufgrund von heterogener Nukleation (nach DeMott et al. 1997, und für eine angenommene Temperatur-unabhängige kritische Übersättigung), und b) für die Auflösung von Zirren in untersättigter Luft. Damit stehen jetzt in ECHAM Routinen zur Verfügung, die es gestatten, den Bedeckungsgrad von Zirren aufgrund homogener und heterogener Nukleation und aufgrund ihres Verdampfens in untersättigter Luft zu jedem Zeitschritt mit einer einheitlichen Methode neu zu berechnen. Dabei finden Bildungs- und Auflösungsprozesse bei deutlich unterschiedlichen relativen Feuchten statt, so dass sich in einem {Bedeckungsgrad, rel. Feuchte} Diagramm eine Hysteresekurve ergibt. Mit den genannten Parametrisierungen sind bereits eine Reihe von Tests mit ECHAM von Frau Dr. Brinkop durchgeführt worden (siehe EP 4.3).

In MESOSCOP ist die Möglichkeit eingeführt worden, zwei Sorten Eis gleichzeitig zu betrachten; dies erlaubt beispielsweise, homogen gebildetes von heterogen gebildetem Eis in Situationen zu unterscheiden, in denen beide Bildungsprozesse relevant sind.

Mit Hilfe des Boxmodells wurden Situationen untersucht, in denen heterogene und homogene Nukleation in Konkurrenz treten können. Dabei zeigte sich, dass echte Konkurrenz (d.h. beide Mechanismen sind simultan am gleichen Ort aktiv) nur in einem sehr engen Bereich von Anzahldichte der heterogenen Gefrierkerne möglich ist. Im allgemeinen wird entweder der eine oder der andere Mechanismus dominieren. Für den Übergang von einer Nukleationsmode in die andere konnte eine analytische Näherungsformel abgeleitet werden, die insbesondere von Temperatur und Vertikalgeschwindigkeit abhängt. Sie lautet:

$$N_c = 2.81 \times 10^{11} f(T)^{3/4} w^{3/2} p^{3/2} T^{-5.415} [s_0 e^*(T)]^{-1/2} [s_{\text{hom}} - s_0]^{-3/4} \quad \text{mit} \quad f(T) = 10^{4-0.02T},$$

mit T: absolute Temperatur (K),  $w > 0$ : Vertikalgeschwindigkeit (m/s), p: Luftdruck (Pa),  $s_0$ : kritische Eis-Übersättigung für das Einsetzen des heterogenen Gefrierens,  $e^*(T)$ : Sättigungsdampfdruck relativ zu Eis (Pa) bei der Temperatur T,  $s_{\text{hom}}$ : kritische Eis-Übersättigung für das Einsetzen des homogenen Gefrierens, und  $N_c$  ist die kritische Anzahldichte an heterogenen Gefrierkernen ( $\text{m}^{-3}$ ), bei deren Überschreitung die heterogene Eisbildung dominiert. Diese Beziehung wird in ECHAM für die Auswahl der einen oder anderen Nukleationsmode verwendet.

Der Antrag für PAZI EP4.2 nannte als Ziel, die Fragen zu beantworten, ob Aerosol aus Flugzeugabgasen zu früherer Wolkenbildung und zu einem höheren Bedeckungsgrad führt. Aufgrund unserer Ergebnisse kann man sagen, dass die Wolkenbildung bei heterogener Nukleation tatsächlich früher (d.h. bei geringerer Übersättigung) einsetzen kann. Dies bedeutet aber nicht automatisch, dass sich auch ein höherer Bedeckungsgrad ergibt, da die heterogen gebildeten Wolken das Wasser in der Gasphase so reduzieren können, dass für eine geraume Weile keine homogene Nukleation mehr möglich ist. Diese hätte aber ohne die heterogenen Prozesse stattgefunden und i.A. zu optisch dickeren Zirren geführt. Insofern kann auch die zweite Frage des Antrags, ob die Strahlungseigenschaften der Zirren vom an der Zirrenbil-

dung beteiligten Aerosole abhängen, eindeutig (aber auch nur in diesem Sinne) mit "ja" beantwortet werden. Die dritte Frage betraf die Parameterisierung dieser Effekte für Klimamodelle, und ist in diesem und den benachbarten Arbeitspaketen durch die Erstellung der Parameterisierungen beantwortet.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Mit der Erstellung dieser Parameterisierungen für ECHAM wurde der Arbeitsplan erfüllt.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Der Mangel an Personal ließ es nach dem ersten Jahr nicht mehr zu, dass mit dem wolkenauflösenden Modell MESOSCOP gearbeitet wurde. Stattdessen wurden Boxmodell und analytische Methoden verwendet.

#### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Verwendung von Parameterisierungen des Bedeckungsgrades von Zirren in ECHAM, und möglicherweise in anderen Klima- und Wettervorhersagemodellen.

#### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Ergebnisse zur heterogenen Nukleation von AIDA und anderen Arbeitsgruppen (insbesondere DeMott).

#### *Erfolge und geplante Veröffentlichungen*

K.M. Gierens, M. Monier, J.-F. Gayet, 2003: The deposition coefficient and its role for cirrus clouds. JGR 108, 4069, doi: 10.1029/2001JD001558.

K. Gierens, 2003: On the transition between heterogeneous and homogeneous freezing. ACP 3, 437-446.

#### *Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

Keine.

### 3.4.3 Globale Modellierung mit ECHAM

Fachkoordination Prof. Dr. R. Sausen, DLR-PA  
 Zuordnung TP4 - Aerosol-Zirren-Modellierung

#### *Darstellung der wissenschaftlich-technischen Ergebnisse*

##### Arbeitspaket 1: Aufbereiten von anthropogenen Aerosolquellen

Die Arbeiten zu diesem Arbeitspaket wurden während des vorhergehenden Berichtszeitraumes weitestgehend abgeschlossen. In diesem Berichtszeitraum waren jedoch noch Ergänzungen erforderlich, die aufgrund der Verzögerung durch die im vorhergehenden Jahresbericht erwähnte Rechnerumstellung erst jetzt angebracht werden konnten. So wurde der im vorhergehenden Bericht beschriebene Emissionsdatensatz zur Rußemission des Luftverkehrs um eine Höhenabhängigkeit der Emissionsindizes für Partikelmasse und -anzahl erweitert. Die Höhenabhängigkeiten wurden im Einzelprojekt EP1.2 erarbeitet (Döpelheuer, 2002<sup>1</sup>).

##### Arbeitspaket 2: Aerosol-Modellierung in ECHAM

Aus den unter ‚Arbeitspaket 1‘ erwähnten Gründen waren auch in diesem Arbeitspaket noch Ergänzungsarbeiten zu leisten. So wurde zum einen das Aerosolmodul um prognostische Gleichungen zur Anzahlkonzentration von Rußpartikeln aus dem Luftverkehr ergänzt. Zum anderen wurden Parametrisierungen der Alterung von Rußpartikeln aus dem Luftverkehr entwickelt und implementiert, welche die Reduktion des Anzahl-Massenverhältnisses derartiger Partikel durch die Wechselwirkung mit Wolken und Hintergrundaerosolen beschreibt. Die Verwendung dieser Parametrisierungen ermöglicht eine wesentlich genauere Eingrenzung der durch den Luftverkehr hervorgerufenen Störungen der Partikelzahlkonzentration in der Tropopausenregion.

Neben den beschriebenen Arbeiten wurde die Erweiterung des hier verwendeten Modells durch das Aerosoldynamikmodul MADE vorangetrieben. MADE soll im Nachfolgeprojekt von PAZI die Simulation von Aerosolgrößenverteilungen sowie eine detailliertere Beschreibung von Aerosol-Zirren-Wechselwirkungen ermöglichen. Es wurden erste erfolgreiche Testsimulationen mit ECHAM4/MADE durchgeführt.

##### Arbeitspaket 3: Parametrisierung der Eisbildung in Zirren und Kondensstreifen

Die im vorhergehenden Berichtszeitraum beschriebene Parametrisierung heterogener Nukleation wurde dem Modell zugeführt und erfolgreich eingesetzt (vgl. ‚Arbeitspaket 6‘).

Die Parametrisierung berücksichtigt heterogene Nukleation oberhalb einer vorgegebenen kritischen Eisübersättigung (30%). Liegt eine Mindestanzahl eisbildender Aerosol von  $0.5 \text{ cm}^{-3}$  (EP4.2) vor, werden die verfügbaren (noch nicht nukleierten) Partikel als Eiskeime dem mikrophysikalischen Wolkenmodul zugeführt. Unterhalb der kritischen Zahl eisbildender Aerosole wird bei ausreichender Übersättigung homogenes Gefrieren (vgl. EP4.1) angenommen. Die in EP4.2 erhaltenen Ergebnisse unterstreichen, dass die Parametrisierung in der oben beschriebenen Form die Eisbildung in erster Näherung gut beschreibt.

---

<sup>1</sup> Döpelheuer, A., Anwendungsorientierte Verfahren zur Bestimmung von CO, HC und Ruß aus Luftfahrttriebwerken, thesis, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt, Report 2002-10, ISSN 1434-8454, 109 pp., Cologne, Germany, 2002.

#### Arbeitspaket 4: Parametrisierung des Bedeckungsgrades von Zirren und Kondensstreifen

Die in EP4.2 entwickelte Parametrisierung des Zirrus-Bedeckungsgrades wurde in in PAZI verwendete ECHAM4-Version implementiert und mit den in Arbeitspaket 2 und 3 erarbeiteten Modulen zur Darstellung von Aerosolen und Wolkenmikrophysik gekoppelt. Die Parametrisierung wurde im Rahmen von zahlreichen Testsimulationen erfolgreich angewendet. Eine eingehende Beschreibung der Parametrisierung findet man im Jahresbericht zu EP4.2

#### Arbeitspaket 5: Modellvalidierung

Die im Berichtszeitraum durch Erweiterungen im Aerosol- und Wolkenteil weiterentwickelte ECHAM4-Version wurde einer eingehenden Validation unterzogen. Die Validation der vom Modell berechneten wolkenmikrophysikalischen Parameter sowie des Strahlungshaushaltes erfolgte in enger Zusammenarbeit mit dem PAZI Projektpartner Dr. U. Lohmann (Dalhousie University, Halifax, Canada). So wurden alle in diesem Zusammenhang relevanten Parameter durch Vergleich mit einer von Dr. Lohmann gelieferten Referenzsimulation, welche eingehend durch Vergleiche mit Satelliten- sowie in-situ Beobachtungsdaten validiert wurde, geprüft.

Die Validation der simulierten Aerosolgrößen erfolgte durch Vergleiche mit in-situ Messdaten. Besonderes Gewicht wurde hierbei auf die Prüfung der simulierten Rußkonzentration sowie der Konzentration der Akkumulationsmode-Partikel ( $\sim 0.1-1 \mu\text{m}$ ) gelegt, da diese Parameter eine zentrale Rolle in den durchzuführenden Simulationen spielen. Vergleiche der für die Tropopausenregion simulierten Rußkonzentration mit in-situ Messungen (Blake und Kato, 1995<sup>2</sup>) zeigen, dass das Modell die in den Hauptflugregionen des Luftverkehrs gemessene Rußkonzentration ausreichend gut repräsentiert, um eine Einschätzung des relativen Beitrages des Luftverkehrs vorzunehmen. Weiterhin wurde die Anzahlkonzentration größerer Hintergrundpartikel (Akkumulationsmode), welche eine wichtige Rolle bei der Simulation der Alterung des flugzeuggenerierten Rußes spielt, mit in-situ Messungen verglichen. Es wurden hierzu die in EP3.1 während der INCA-Kampagne sowie die während LACE 98 (Petzold et al., 2002<sup>3</sup>) gewonnenen Aerosoldaten herangezogen. Es zeigt sich, dass das Modell die in der Troposphäre gemessenen Partikelzahlkonzentrationen sehr gut wiedergibt. Die für die unterste Stratosphäre simulierten Anzahlkonzentrationen sind jedoch im Vergleich zu den Messungen häufig zu gering. Dies hat eine zu geringere Effizienz der Wechselwirkung flugzeuggenerierter Rußpartikel mit Hintergrundpartikeln und damit eine zu wenig effiziente Alterung der Rußpartikel im Modell zur Folge. In den zu Arbeitspaket 6 durchgeführten Simulationen wurde dieser Effekt durch eine Erhöhung der Effizienz der Rußalterung kompensiert.

#### Arbeitspaket 6: Sensitivitätsexperimente

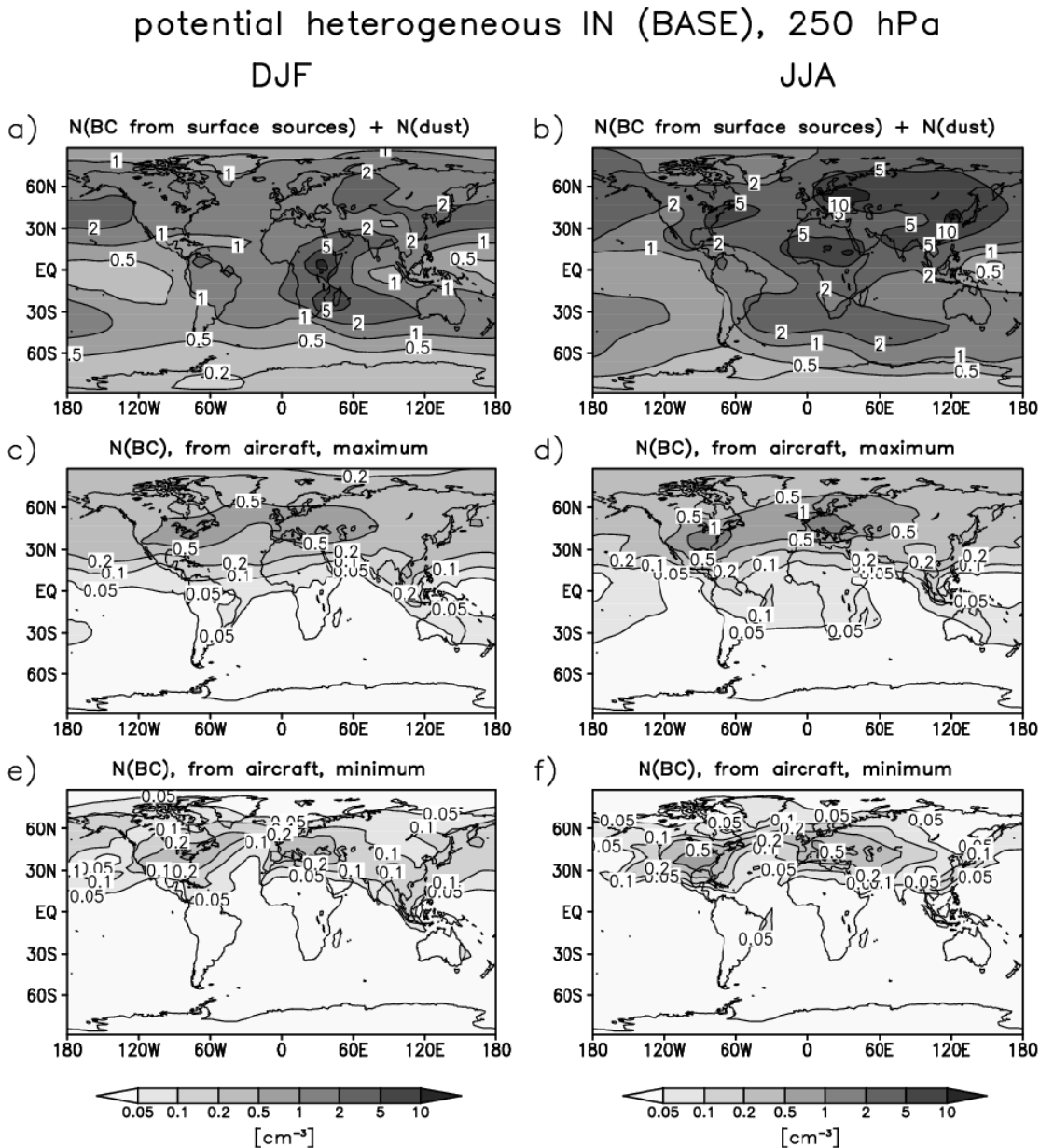
##### Experimente zur flugzeuginduzierten Rußstörung:

Die PAZI-Aktivitäten des vorhergehenden Berichtszeitraumes (EP4.1, EP4.3) zeigten, dass eine deutliche durch Aerosolemissionen des Luftverkehrs bedingte Veränderung der Zirrusbewölkung (Sekundäreffekt), mit großer Wahrscheinlichkeit nur durch flugzeuggenerierte Rußpartikel hervorgerufen werden kann. In diesem Zusammenhang ist es wesentlich, zunächst das

<sup>2</sup> Blake, D.F., and K. Kato, Latitudinal distribution of black carbon soot in the upper troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 100, 7195-7202, 1995.

<sup>3</sup> Petzold, A., M. Fiebig, H. Flentje, A. Keil, U. Leiterer, F. Schröder, A. Stifter, M. Wendisch, and P. Wendling, Vertical variability of aerosol properties observed at a continental site during LACE 98, *J. Geophys. Res.*, 107(D21), 8128, doi:10.1029/2001JD001043, 2002.

Vorliegen einer signifikanten Störung des Rußhaushaltes der Tropopausenregion durch den Luftverkehr nachzuweisen. Hierzu wurde ein Satz von Sensitivitätsexperimenten durchgeführt, wobei die hygroskopischen Eigenschaften der Rußpartikel (derzeit unbekannt) variiert wurden. Die Simulation, welche die beste Übereinstimmung mit Beobachtungsdaten zeigte (Arbeitspaket 5), wurde zur näheren Analyse der Flugzeugeffekte herangezogen. Die Simulation zeigt, dass die durch den Luftverkehr bedingte Störung der Rußmassenkonzentration generell sehr gering ist (maximal 1-3% in den Hauptflugregionen). Sie ist deutlich kleiner als die Variabilität der gesamten Rußkonzentration und daher nicht signifikant.



**Abb. 1:** Anzahlkonzentration potentieller heterogener IN aus Bodenquellen (Ruß und Mineralstaub; a, b) sowie der Anzahlkonzentration flugzeuggenerierter Rußpartikel (c-f). Gezeigt sind die für das 250hPa Niveau (Hauptfluglevel) für Winter- (DJF) und Sommerbedingungen (JJA) simulierten Partikelzahlen. Es sind sowohl die Maximalzahlen flugzeuggenerierter Partikel (c, d; Alterungsprozesse vernachlässigt) als auch die entsprechenden Minimalzahlen (e, f; sehr effektive Alterung) dargestellt. Es handelt sich um Mittelwerte aus 5 Modelljahren.

Für die Nukleation von Eispartikeln an heterogenen Eisnuklei (IN), z.B. Ruß- und Mineralstaubpartikel, ist jedoch die Anzahlkonzentration der vorliegenden IN gegebenenfalls bedeutender als deren Massenkonzentration. Es wurde daher zusätzlich die luftverkehrsinduzierte Störung der Anzahlkonzentration potentieller heterogener IN untersucht: Die Abbildungen 1a und 1b zeigen die für das 250hPa (Hauptflughöhe) simulierte Gesamtanzahlkonzentration potentieller heterogener IN aus Bodenquellen, die aus der Summe der Gesamtzahl der aus Bodenquellen stammenden Ruß- und Staubpartikel für Winter- bzw. Sommerbedingungen berechnet wurde. In den Hauptflugregionen findet man demnach zwischen  $1 \text{ cm}^{-3}$  und etwa  $10 \text{ cm}^{-3}$  Partikel, die potentiell als heterogene IN wirken. Die Abbildungen 1c und 1d zeigen entsprechend die maximalen Anzahlkonzentrationen der flugzeuginduzierten Rußpartikel, die sich durch Vernachlässigung von Alterungsprozessen (Arbeitspaket 2) ergeben. Mit maximal etwa  $0.5\text{-}1 \text{ cm}^{-3}$  sind die Anzahlen der Rußpartikel aus Flugzeugen zum Teil nur wenig geringer als die der aus Bodenquellen stammenden potentiellen IN. Der relative Beitrag des Luftverkehrs zur Gesamtzahl der potentiellen IN beträgt teilweise mehr als 30%. Er ist, vernachlässigt man die Partikelalterung, in den Hauptflugregionen zumeist deutlich größer als die Variabilität der Gesamtanzahl und somit zumeist signifikant. Setzt man die luftverkehrsgenerierten Rußpartikel einer sehr effizienten Alterung aus, welche mit einem entsprechenden Rückgang des Anzahl-Massen-Verhältnisses verbunden ist, findet man immer noch deutliche luftverkehrsinduzierte Störungen (bis zu 20%) der Anzahlkonzentration potentieller IN.

#### Experimente zum Einfluss flugzeuginduzierter Rußpartikel auf die Zirrusbewölkung:

Die oben beschriebenen Experimente haben deutlich gezeigt, dass der Luftverkehr eine signifikante Erhöhung der Anzahlkonzentration potentieller heterogener IN bewirken kann. Es stellt sich daher die Frage, inwieweit flugzeuggenerierte Rußpartikel als heterogene IN die Zirrusbewölkung verändern können. Um die möglichen Auswirkungen einzugrenzen, wurde eine Maximalabschätzung der Effekte vorgenommen, indem den flugzeuggenerierten Rußpartikeln eine hohe Effizienz als IN zugeordnet wurde und generell die maximale Anzahlstörung (keine Rußalterung) angenommen wurde. Es wurde untersucht welche Auswirkungen die Rußpartikel aus Flugzeugen auf einen Hintergrund haben der entweder durch homogene oder durch heterogene Nukleation dominiert ist (derzeit ist unklar, welcher Mechanismus bei der Zirrenbildung dominiert). Es wurden dazu folgende Szenarien betrachtet:

Szenario 1: Es wird angenommen, dass neben flugzeuggenerierten Rußpartikeln auch die hydrophilen Rußpartikel aus Bodenquellen sowie die mineralischen Staubpartikel als heterogene IN wirken. Die Eisbildung erfolgt gemäß der unter ‚Arbeitspaket 3‘ beschriebenen Verfahrensweise. Aufgrund der hohen Verfügbarkeit heterogener IN ist die Zirrusbildung auf der Nordhemisphäre in den entsprechend durchgeführten Experimenten durch heterogene Nukleation dominiert. Die Rußemission des Luftverkehrs bewirkt, entsprechend der Erhöhung der IN Konzentration (siehe oben), in den mittleren nördlichen Breiten eine Erhöhung der Eiskristallanzahlkonzentration. Diese liegt in einer Größenordnung von 10%. Die Zirrushäufigkeit sowie der mittlere Eisgehalt werden jedoch kaum beeinflusst. Dieses Ergebnis beruht auf einer Auswertung der bisher simulierten 6 Modelljahre. Um die Signifikanz der simulierten Effekte nachzuweisen ist es erforderlich, die Rechnungen um weitere Modelljahre zu verlängern. Abbildungen zu den simulierten Effekten sind daher noch nicht beigefügt. Aufgrund des hohen Rechenzeitbedarfs, wird sich die Signifikanzprüfung bis zum Ende des Berichtszeitraumes und gegebenenfalls bis darüber hinaus hinziehen

Szenario 2: In diesem Fall wird angenommen, dass Rußpartikel aus Bodenquellen und Staubpartikel nicht zur Eisbildung beitragen. Diese wird daher entweder durch heterogene Nukleation an flugzeuggenerierten Rußpartikeln oder, sofern deren Anzahlkonzentration geringer



als  $0.5 \text{ cm}^{-3}$  (siehe ‚Arbeitspaket 3‘) ist, durch homogene Nukleation eingeleitet. Die Simulationen zu diesem Szenario werden derzeit noch durchgeführt. Es ist damit zu rechnen, dass in diesem Szenario der Luftverkehr zu einer Verringerung der Eiskristallzahl führt. Dies zeigen die bis jetzt erhaltenen Ergebnisse. Eine belastbare Aussage hierzu kann jedoch erst erfolgen, wenn eine ausreichend hohe Anzahl von Modelljahren vorliegt.

Weitere Szenarien?: Es besteht die Möglichkeit, dass es auch bei Anzahlkonzentrationen eisbildender Aerosole unterhalb von  $0.5 \text{ cm}^{-3}$  zu deutlichen Effekten heterogener Nukleation kommt (EP4.2). Weiterhin ist es denkbar, dass die eisbildenden Eigenschaften von Ruß und Mineralstaub von den oben angenommenen Gefriereigenschaften abweichen. Eine Betrachtung entsprechender Szenarien ist jedoch nur nach weiteren Veränderungen des Modellsystems möglich. Zum einen wäre es erforderlich, die Konkurrenz heterogener und homogener Nukleation detailliert zu parametrisieren (EP4.1). Zum anderen wäre eine deutliche Verbesserung der vom Modell geleisteten Prognose der Vertikalgeschwindigkeit erforderlich. Derartige Aktivitäten sollen im Nachfolgeprojekt (PAZI-2) erfolgen.

#### *Stand des Arbeits- und Finanzierungsplanes*

Die Arbeiten folgten im Wesentlichen dem Zeitplan. Die Meilensteine für das Berichtsjahr wurden lediglich im ‚Arbeitspaket 6‘ noch nicht erreicht. Diese Arbeiten werden in der Vorhabensphase von PAZI bis zum Start des Nachfolgeprojektes abgeschlossen.

#### *Begründung für notwendige Änderungen*

Die in Arbeitspaket 6 durchzuführenden Sensitivitätsstudien zur durch den Luftverkehr herbeigeführten Veränderung der Zirrenbedeckung (siehe auch EP4.2) konnten aufgrund des Ausscheidens der damit befassten Mitarbeiterin Dr. Sabine Brinkop nicht zu Ende geführt werden. Für Frau Brinkop konnte kurzfristig kein Ersatz gefunden werden. Frau Marquart, die als Nachfolgerin geeignet wäre, kann ebenfalls nicht weiterbeschäftigt werden.

Die Verzögerung der unter ‚Arbeitspaket 6‘ beschriebenen Aktivitäten (Szenarien 1 und 2) ist im wesentlichen durch die im vorhergehenden Berichtszeitraum durchgeführte Rechnerumstellung bedingt. Die Arbeiten werden, sofern es nicht zu Engpässen im Großrechnerbereich kommt, 1-2 Monate nach Projektende abgeschlossen sein.

#### *Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse*

Die von uns erstellten bzw. bearbeiteten Datensätze stehen auch für weitere Modellierungsaktivitäten (von uns oder anderen Gruppen) zu Verfügung und werden nach unserer Erfahrung auch genutzt werden. Analoges gilt für die Datensätze zur Modellvalidierung und für die Modellweiterentwicklungen. Die Ergebnisse sind eine wesentliche Grundlage für die im PAZI Nachfolgeprojekt geplanten Aktivitäten.

#### *Relevante Ergebnisse Dritter*

Wesentliche Voraussetzung für die erfolgreiche Durchführung des Einzelprojektes EP4.3 waren die in anderen Einzelprojekten erhaltenen Ergebnisse. Hier sind insbesondere die Einzelprojekte EP1.2, EP2.1, EP3.1, EP4.1 sowie EP4.2 zu nennen.

*Erfolgte und geplante Veröffentlichungen*

Hendricks, J., B. Kärcher, A. Döpelheuer, J. Feichter, and U. Lohmann, 2003: Simulating the global atmospheric black carbon cycle: Aircraft contribution revisited, *in Vorbereitung*.

Hendricks, J., B. Kärcher, and U. Lohmann, 2003: Potential impact of aviation-induced soot particles on cirrus clouds: Global model studies with the ECHAM GCM, *in Vorbereitung*.

Lauer, A., J. Hendricks, B. Schell, H. Hass, J. Feichter, and S. Metzger, 2003: Global modelling of tropospheric aerosols with ECHAM4/MADE, *in Vorbereitung*.

*Laufende und geplante Drittmittelvorhaben im Zusammenhang mit PAZI*

Geplante Integrierte Projekte SCOUT und QUANTIFY



## Anhang 1: Liste der Veröffentlichungen (Stand: August 2003)

### Publikationen im Bereich Atmosphärenforschung

Arnold, F., Th. Stilp, R. Busen, and U. Schumann. Jet engine exhaust chemiion measurements: Implications for gaseous SO<sub>3</sub> and H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. *Atmos. Environ.*, 32, 3073-3077, 1998.

Arnold, F., K.-H. Wohlfrom, M.W. Klemm, J. Schneider, K. Gollinger, and U. Schumann. First gaseous ion composition measurements in the exhaust plume of a jet aircraft in flight: Implications for gaseous sulfuric acid, aerosols, and chemiions. *Geophys. Res. Lett.*, 25, 2137-2140, 1998.

Arnold, F., J. Curtius, B. Sierau, V. Bürger, and R. Busen. Detection of massive negative chemiions in the exhaust plume of a jet aircraft in flight. *Geophys. Res. Lett.*, 26, 1577-1580, 1999.

Arnold, F., A. Kiendler, V. Wiedemer, S. Aberle, Th. Stilp, and R. Busen. Chemiion concentration measurements in jet engine exhaust at the ground: Implications for ion chemistry and aerosol formation in the wake of a jet aircraft. *Geophys. Res. Lett.*, 27, 1723-1726, 2000.

Baehr, J., H. Schlager, H. Ziereis, P. Stock, P. van Velthoven, R. Busen, J. Ström, and U. Schumann. Aircraft observations of NO, NO<sub>y</sub>, CO, and O<sub>3</sub> in the upper troposphere from 60°N to 60°S – Interhemispheric differences at midlatitudes. *Geophys. Res. Lett.*, 30, 1598, 10.1029/2003GL016935, 2003.

Duda, D.P., P. Minnis, W.L. Smith, Jr., S. Sun-Mack, J.K. Ayers, J.-F. Gayet, F. Auriol, J. Ström, A. Minikin, A. Petzold, and U. Schumann. An interhemispheric comparison of cirrus cloud properties using MODIS and GOES, 11<sup>th</sup> Conference on Atmospheric Radiation, 3—7 June 2002, Ogden, UT, American Meteorological Society, Boston, Mass. USA, paper no. J1.6, pp. 4, 2002.

Eichkorn, S., K.-H. Wohlfrom, F. Arnold, and R. Busen. Massive positive and negative chemiions in the exhaust of an aircraft jet engine at ground level: Mass distribution measurements and implications for aerosol formation. *Atmos. Environ.*, 36, 1821-1825, 2002.

Gayet, J.-F., F. Auriol, A. Minikin, J. Ström, M. Seifert, R. Krejci, and A. Petzold, G. Febvre, and U. Schumann. Quantitative measurement of the microphysical and optical properties of cirrus clouds with four different in situ probes: Evidence of small ice crystals. *Geophys. Res. Lett.*, 29, 2230, doi:10.1029/2001GL014342, 2002.

Gierens, K.M., M. Monier, and J.-F. Gayet. The deposition coefficient and its role for cirrus clouds. *J. Geophys. Res.*, 108, 4069, doi: 10.1029/2001JD001558, 2003.

Gierens, K. On the transition between heterogeneous and homogeneous freezing. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 437-446.

González, A., P. Wendling, B. Mayer, J.-F. Gayet and T. Rother, Remote sensing of cirrus cloud properties in the presence of lower clouds: An ATSR-2 case study during the Interhemispheric Differences in Cirrus Properties From Anthropogenic Emissions (INCA) experiment. *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2002JD002535, 2002.

Gysel, M., S. Nyeki, E. Weingartner, U. Baltensperger, H. Giebl, R. Hitzenberger, A. Petzold, and C.W. Wilson. Properties of jet engine combustion particles during the PartEmis experiment: Hygroscopicity at subsaturated conditions. *Geophys. Res. Lett.*, 30, doi:10.1029/2003GL016896, 2003.

Haag, W., B. Kärcher, S. Schaefers, O. Stetzer, O. Möhler, U. Schurath, M. Krämer, and C. Schiller. Numerical simulations of homogeneous freezing processes in the aerosol chamber AIDA. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 195-210, 2003a.

Haag, W., B. Kärcher, J. Ström, A. Minikin, U. Lohmann, J. Ovarlez, and A. Stohl. Freezing thresholds and cirrus cloud formation mechanisms inferred from in situ measurements of relative humidity. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 3267-3299, 2003b.

- Hitzenberger, R., H. Giebl, A. Petzold, M. Gysel, S. Nyeki, E. Weingartner, U. Baltensperger, and C.W. Wilson. Properties of jet engine combustor particles during the PartEmis experiment. Hygroscopic properties at supersaturated conditions. *Geophys. Res. Lett.*, 30, doi:10.1029/2003GL017294, 2003.
- Immler, F. and O. Schrems. LIDAR measurements of cirrus clouds in the northern and southern hemisphere during INCA (55°N, 53°S): A comparative study. *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1809, doi:10.1029/2002GL015077, 2002.
- Immler F., and O. Schrems. Determination of tropical cirrus properties by simultaneous LIDAR and radiosonde measurements. *Geophys. Res. Lett.*, 29, 23, doi:10.1029/2002GL015076, 2002.
- Immler F., and O. Schrems. Vertical profiles, optical and microphysical properties of Saharan dust layers determined by a ship-borne lidar. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 2707-2737, 2003.
- Immler F.. A new algorithm for simultaneous ozone and aerosol retrieval from tropospheric DIAL measurements. *Appl Phys*, B76, doi:10.1007/s00340-003-1157-z, 593-596, 2003.
- Jensen, E. J., O.B. Toon, S.A. Vay, J. Ovarlez, R. May, P. Bui, C.H. Twohy, B. Gandrud, R.F. Pueschel, and U. Schumann. Prevalence of ice-supersaturated regions in the upper troposphere: Implications for optically thin ice cloud formation. *J. Geophys. Res.*, 106, 17253-17266, 2001.
- Kärcher, B., R.P. Turco, F. Yu, M.Y. Danilin, D.K. Weisenstein, R.C. Miake-Lye, and R. Busen. A unified model for ultrafine aircraft particle emissions. *J. Geophys. Res.*, 105, 29379-29386, 2000.
- Kärcher, B. and U. Lohmann. A parameterization of cirrus cloud formation: Homogeneous freezing of supercooled aerosols. *J. Geophys. Res.*, 107, 4010, doi:10.1029/2001JD000470, 2002.
- Kärcher, B. Properties of subvisible cirrus clouds formed by homogeneous freezing. *Atmos. Chem. Phys.*, 2, 161-170, 2002.
- Kärcher, B., and U. Lohmann. A parameterization of cirrus cloud formation: Homogeneous freezing including effects of aerosol size. *J. Geophys. Res.*, 107, 4698, doi:10.1029/2001JD001429, 2002.
- Kärcher, B., and J. Ström. The roles of dynamical variability and aerosols in cirrus cloud formation. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 823-838, 2003.
- Kärcher, B. and U. Lohmann. A parameterization of cirrus cloud formation: Heterogeneous freezing. *J. Geophys. Res.*, 108, 4402, doi:10.1029/2002JD003220, 2003.
- Kärcher, B., and W. Haag. Factors controlling upper tropospheric relative humidity. *Ann. Geophysicae*, 21, im Druck, 2003.
- Kärcher, B., Simulating gas-aerosol-cirrus interactions: Process-oriented microphysical model and applications. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 4129-4181, 2003.
- Lin, R.-F., D.O'C. Starr, P.J. DeMott, R. Cotton, K. Sassen, E. Jensen, B. Kärcher, and X. Liu. Cirrus parcel model comparison project. Phase 1: The critical components to simulate cirrus initiation explicitly. *J. Atmos. Sci.*, 59, 2305-2329, 2002.
- Lohmann, U. and B. Kärcher. First interactive simulations of cirrus clouds formed by homogeneous freezing in the ECHAM GCM. *J. Geophys. Res.*, 107, 4105, doi:10.1029/2001JD000767, 2002.
- Lohmann, U., B. Kärcher, and C. Timmreck. Impact of the Mt. Pinatubo eruption on cirrus clouds formed by homogeneous freezing in the ECHAM GCM. *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD003185, im Druck, 2003.
- Marquart, S., and B. Mayer. Towards a reliable GCM estimation of contrail radiative forcing. *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1179, doi:10.1029/2001GL014075, 2002.
- Marquart, S., M. Ponater, F. Mager, and R. Sausen. Future development of contrail cover, optical depth and radiative forcing: impacts of increasing air traffic and climate change. *J. Clim.*, 16, 2890-2904, 2003.

- Meyer, R., H. Mannstein, R. Meerkötter, U. Schumann, and P. Wendling. Regional radiative forcing by line-shaped contrails derived from satellite data. *J. Geophys. Res.*, 107, 4104, doi:10.1029/2001JD000547, 2002.
- Minikin, A., A. Petzold, J. Ström, R. Krejci, M. Seifert, H. Schlager, P. van Velthoven, and U. Schumann. Aircraft observations of the upper tropospheric fine particle aerosol in the northern and southern hemispheres at midlatitudes. *Geophys. Res. Lett.*, 30, 1503, doi:10.1029/2002GL016458, 2003.
- Minnis, P., R. Palikonda, D. R. Doelling, U. Schumann, and K. Gierens: Changes in cirrus cloudiness and their relationship to contrails, Proceedings American Meteorological Society, Boston, Mass, USA, paper no. 11.9, p. 239-242, 2001.
- Möhler, O., O. Stetzer, S. Schaefers, C. Linke, M. Schnaiter, R. Tiede, H. Saathoff, M. Krämer, A. Mangold, P. Budz, P. Zink, J. Schreiner, K. Mauersberger, W. Haag, B. Kärcher, and U. Schurath. Experimental investigations of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 211-223, 2003.
- Ovarlez, J. J.-F. Gayet, K. Gierens, J. Ström, H. Ovarlez, F. Auriol, R. Busen, and U. Schumann. Water vapour measurements inside cirrus clouds in Northern and Southern hemispheres during INCA, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1813, doi:10.1029/2001GL014440, 2002.
- Petzold, A., C.W. Wilson, U. Baltensperger, M. Fiebig, L. Fritzsche, H. Giebl, M. Gysel, R. Hitzenberger, C.D. Hurley, S. Nyeki, H. Puxbaum, U. Schumann, C. Stein, and S. Vrchoticky, Particle emission from aircraft engines - an overview of the European project PARTEMIS, International Symposium on Combustion and Atmospheric Pollution, St. Petersburg, Russia, 8-11 July 2003, Combustion and Atmospheric Pollution, Torus Press, Moscow (2003), 376-381, 2003.
- Petzold, A., C. Stein, S. Nyeki, M. Gysel, E. Weingartner, U. Baltensperger, H. Giebl, R. Hitzenberger, A. Döpelheuer, S. Vrchoticky, H. Puxbaum, M. Johnson, C.D. Hurley, R. Marsh, and C.W. Wilson. Properties of jet engine combustion particles during the PartEmis experiment: Microphysics and chemistry. *Geophys. Res. Lett.*, 30, doi:10.1029/2003GL017283, 2003.
- Ponater, M., S. Marquart, and R. Sausen. Contrails in a comprehensive global climate model: Parameterisation and radiative forcing results, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD000429, 2002.
- Rother, T., K. Schmidt, and S. Havemann. Light scattering on hexagonal ice columns. *J. Opt. Soc. Am. A*, 18, 2512-2517, 2001.
- Schumann, U., R. Busen, and M. Plohr. Experimental test of the influence of propulsion efficiency on contrail formation. *J. Aircraft*, 37, 1083-1087, 2000.
- Schumann, U., Influence of propulsion efficiency on contrail formation. *Aerosp. Sci. Technol.*, 4, 391-401, 2000.
- Schumann, U., J. Ström, F. Arnold, T.K. Berntsen, P.M. de F. Forster, J.-F. Gayet, and D. Hauglustaine. Aviation impact on atmospheric composition and climate, in: European Research in the Stratosphere 1996-2000, Chapter 7, EUR 19867, 257-307, European Commission, Brussels, 2001.
- Schumann, U. and G.T. Amanatidis (Eds.). Aviation, Aerosols, Contrails and Cirrus Clouds (A<sup>2</sup>C<sup>3</sup>), Proceedings of a European Workshop, Seeheim (near Frankfurt/Main), Germany, July 10-12, 2000, Air Pollution Research Report 74, EUR 19428, European Commission, Brussels, pp. 317, 2001.
- Schumann, U.. Air traffic and the environment. In: Climate of the 21<sup>st</sup> Century: Changes and Risks (José L. Lozán, Hartmut Graßl, and Peter Hupfer, Eds.), Wissenschaftliche Auswertungen, GEO, Hamburg, Germany, ISBN 3-00-002925-7, 123-126, 2001.
- Schumann, U. Contrail Cirrus, in D. K. Lynch, K. Sassen, D. O'C. Starr, and G. Stephens (Eds.): *Cirrus*, Oxford Univ. Press, p. 231-255, 2002a.
- Schumann, U. Aircraft Emissions. *Encyclopedia of Global Environmental Change*, Wiley, Vol. 3, 178-186, 2002b.

Schumann, U., F. Arnold, R. Busen, J. Curtius, B. Kärcher, A. Kiendler, A. Petzold, H. Schlager, F. Schröder, and K.-H. Wohlfrom. Influence of fuel sulfur on the composition of aircraft exhaust plumes: The experiments SULFUR 1-7. *J. Geophys. Res.*, 107, 4247, doi:10.1029/2001JD000813, 2002.

Schumann, U., Results and open questions concerning the impact of aircraft emissions on cloud cover, International Symposium on Combustion and Atmospheric Pollution, St. Petersburg, Russia, 8-11 July 2003, Combustion and Atmospheric Pollution, Torus Press, Moscow, 382-385, 2003.

Seifert, M., J. Ström, R. Krejci, A. Minikin, A. Petzold, J.-F. Gayet, U. Schumann, and J. Ovarlez. In situ observations of aerosol particles remaining from evaporated cirrus crystals: Comparing clean and polluted air masses. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2, 1599–1633, 2002.

Seifert, M., J. Ström, R. Krejci, A. Minikin, A. Petzold, J.-F. Gayet, H. Schlager, H. Ziereis, U. Schumann and J. Ovarlez. Aerosol-cirrus interactions: A number based phenomenon at all? *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 3625-3657, 2003

Seifert, M., J. Ström, R. Krejci, A. Minikin, A. Petzold, J.-F. Gayet, H. Schlager, H. Ziereis, U. Schumann and J. Ovarlez. Thermal stability analysis of particles incorporated in cirrus crystals and of non-activated particles in between the cirrus crystals: Comparing clean and polluted air masses. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 3659-3679, 2003

Starik, A.M., A.M. Savel'ev, N.S. Titova, and U. Schumann. Modeling of sulfur gases and chemiions in aircraft engines, *Aerosp. Sci. Technol.*, 6, 63-81, 2002.

Ström, J., M. Seifert, B. Kärcher, J. Ovarlez, A. Minikin, J.-F. Gayet, R. Krejci, A. Petzold, F. Auriol, R. Busen, U. Schumann, W. Haag, H.-C. Hansson. Cirrus cloud occurrence as a function of ambient relative humidity: A comparison of observations from the Southern and Northern Hemisphere midlatitudes obtained during the INCA experiment, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 3301-3333, 2003

Szakáll, M., Z. Bozóki, M. Krämer, N. Spelten, O. Möhler, and U. Schurath. Evaluation of a photoacoustic detector for water vapor measurements under simulated tropospheric/lower stratospheric conditions, *Environ. Sci. Technol.*, 35, 4881-4885, 2001.

### Publikationen im Bereich Rußforschung / Ingenieurwissenschaften

Braun-Unkhoff, M., und P. Frank. *Untersuchungen zum Start der Rußbildung bei hohen Drücken*, VDI Berichte 1629, 467, VDI Verlag Düsseldorf, 2001.

Böhm, H., M. Braun-Unkhoff, and P. Frank. *Investigations on Initial Soot Formation at High Pressure*, Progress in Computational Fluid Dynamics, Vol.3, No.2-4, im Druck, 2003.

Döpelheuer, A. *Aircraft Emission Parameter Modelling*, Dossier "Aviation and the Environment" in: Air & Space Europe, Editions Elsevier, ISSN 1290-0958, May - June 2000.

Kunz, O., B. Noll, R. Lückerath, M. Aigner, and S. Hohmann. Computational combustion simulation for an aircraft model combustor. *AIAA paper 2001-3706*, 2001.

Noll, B., R. Kessler, P. Theisen, H. Schütz, M. Aigner, and S. Hohmann. Flow field mixing characteristics of an aero-engine combustor - Part II: Numerical Simulations. *AIAA paper 2002-3708*, 2002.

Plohr, M., A. Döpelheuer, and M. Lecht. The gas turbine heat cycle and its influence on fuel efficiency and emissions, Paper 34 in "Gas Turbine Operation and Technology for Land, Sea and Air Propulsion and Power Systems". RTO MP-34, AC/323(AVT)TP/14, 2000.

Wahl, C., and M. Aigner. Aircraft gas turbine soot emission tests under technically relevant conditions in an altitude test facility and validation of soot measurement techniques. Paper Number GT 2003-38797, *ASME*, 2003.

### Promotionen und Habilitationen

Döpelheuer, A., *Anwendungsorientierte Verfahren zur Bestimmung von CO, HC und Ruß aus Luftfahrttriebwerken*. Dissertation, DLR-Forschungsbericht 2002-10, DLR Institut für Antriebstechnik, Köln, 2002.

Hu, D., *Modellierung und Modellentwicklung der Rußbildung bei hohem Druck in vorgemischten Verbrennungssysteme*, Dissertation an der Fakultät Energietechnik der Universität Stuttgart, 2002.

Baehr, J., *Flugzeugmessungen von NO, NO<sub>y</sub>, CO und O<sub>3</sub> in der freien Troposphäre zwischen 60°N und 60°S – Nord-Süd-Kontrast und Verteilung in den Tropen*, Ludwig-Maximilians-Universität München, Dissertation in Vorbereitung für WS 2003/2004.

Haag, W., *Zur Initiierung der Eisphase in Zirruswolken: Numerische Simulationen von Gefrierprozessen in einer Aerosolkammer und atmosphärische Implikationen*, Ludwig-Maximilians-Universität München, Dissertation in Vorbereitung für WS 2003/2004.

Spichtinger, P., *Eisübersättigte Regionen in der Tropopausenregion*, Ludwig-Maximilians-Universität München, Dissertation in Vorbereitung für WS 2003/2004.

Kärcher, B., Ludwig-Maximilians-Universität München, Sektion Physik, Umhabilitation von der Universität Heidelberg, 2000.

### Patente und Patentanmeldungen

C. Wahl, V. Krüger, und M. Aigner: *Vorrichtung und Verfahren zur kontrollierten Erzeugung von Nano-Rußpartikeln*, Patentanmeldung: Amtl. Aktenzeichen 102 43 307.0, 2002.

### Geplante Veröffentlichungen

Hendricks, J., B. Kärcher, A. Döpelheuer, J. Feichter, and U. Lohmann, *Simulating the global atmospheric black carbon cycle: Aircraft contribution revisited*, *in Vorbereitung*, 2003.

Hendricks, J., B. Kärcher, and U. Lohmann, *Potential impact of aviation-induced soot particles on cirrus clouds: Global model studies with the ECHAM GCM*, *in Vorbereitung*, 2003.

Kärcher, B., *Particles and Cirrus Clouds (PAZI): Overview of results 2000-2003*. Proceedings European Conference "Aviation, Atmosphere and Climate" (AAC-Conference), Friedrichshafen, 30.6-3.7.2003, *im Druck*, 2003.

Krüger, V., K.P. Geigle, W. Stricker, and M. Aigner, *Soot particle size measurements with laser-induced incandescence: Validation of the signal interpretation model in flames*, *in Vorbereitung*, 2003.

Lauer, A., J. Hendricks, B. Schell, H. Hass, J. Feichter, and S. Metzger, *Global modelling of tropospheric aerosols with ECHAM4/MADE*, *in Vorbereitung*.

Mannstein, H., and U. Schumann. *Contrail cirrus over Europe*, *eingereicht*, 2003.

Meyer, R., R. Büll, C. Leiter, H. Mannstein, S. Marquart, T. Oki, and P. Wendling, *Contrail observations over Southern and Eastern Asia in NOAA/AVHRR data and intercomparison to contrail simulations in a GCM*. *Int. J. Remote Sensing*, *eingereicht*, 2002.

Schumann, U., *What has been learned*. Proceedings European Conference "Aviation, Atmosphere and Climate" (AAC-Conference), Friedrichshafen, 30.6.-3.7.2003, *im Druck*, 2003.





## **Anhang 2: Skizze des Nachfolgeprojektes PAZI-2 (Stand: Juni 2003)**

### Motivation

Moderne Flugzeugtriebwerke können derzeit in technischer Hinsicht im Hinblick auf eine Minimierung ihrer Umweltverträglichkeit nicht optimal ausgelegt werden. Zum einen ist unklar, wie die partikulären Emissionen von Flugzeugen (insbesondere Ruß) in der Atmosphäre zur Wolkenbildung und somit zu möglichen Klimaänderungen beitragen. Zum anderen bestehen große Wissenslücken über die Wirkung konkurrierender natürlicher und anthropogener Partikelquellen auf Bewölkung und Klima.

Für die Luftfahrtindustrie ist es wichtig, frühzeitig zu wissen, wie die Emissionen von Rußpartikeln die Bewölkung und das Klima beeinflussen und auf welche Weise man diesem Problem entgegen kann. Nur so kann die Industrie den Nutzen ihrer umfangreichen, langfristigen Investitionen sicherstellen. Frühzeitiges Wissen eröffnet dabei einen internationalen Wettbewerbsvorteil.

PAZI wird erfolgreich zum 30.6.2003 beendet. Auf der AAC-Tagung vom 30.6. bis 3.7.2003 in Friedrichshafen wird darüber zusammenfassend berichtet. Es wurden erhebliche Fortschritte hinsichtlich der Kenntnisse über Rußentstehung, Wirkung von Aerosolen auf Eispartikelbildung und der Modellierung von Aerosolen und Zirren erzielt (vgl. vorliegende Statusberichte). Es ist jedoch nicht möglich, die Aerosolwirkungen auf Zirren abschließend zu bewerten.

Ein Fortsetzungsantrag PAZI-2 war bereits zu Beginn des HGF-Strategiefondsprojektes PAZI vorgesehen. Bei der damaligen Antragstellung wurde festgestellt „daß das Projekt sehr anspruchsvolle Fragestellungen behandelt“ und „nicht zu allen Fragen innerhalb von drei Jahren eine abschließende Antwort möglich ist“. Im Bescheid der HGF vom 30.5.2000 an Prof. Kröll haben die Gutachter in ihren Hinweisen an die Antragsteller ausdrücklich vermerkt, daß die „Projektförderung für drei Jahre als ein erster Schritt angesehen wird, dem weitere wesentliche Schritte folgen müssen“. Die wesentlichen Schritte sollen nun in PAZI-2 erfolgen. Wegen der Komplexität der Rußbildung und der Aerosol-Zirren-Wechselwirkung und der dazu notwendigen Experimente und Modellentwicklungen sind für das Projekt PAZI-2 vier Jahre erforderlich.

### Ziele

- Entwicklung verlässlicher Simulationstechniken für reale Brennkammern zur Prognose von Rußemissionen durch gezielte Verbesserung bestehender Rußmodelle;
- Experimentelle Bestimmung der Wirkung von Rußpartikeln und anderen Aerosolen auf Zirren;
- Entwicklung von Rechenmodellen zur Quantifizierung der anthropogenen Klimawirkung von Aerosolen und der daraus entstehenden Eiswolken, speziell solcher aus dem Luftverkehr.

Die Ziele werden mit einer Kombination von gezielten Labor- und Feldmessungen, mit Messungen in einer Aerosol-/Wolkenkammer und in beziehungsweise hinter realen Brennkammern, mit Prozeßstudien, mit der Auswertung von Satellitendaten und mit globalen Modellen erreicht. Dabei werden die innovativen Ansätze, die im Vorläuferprojekt begonnen wurden (Rußmessungen, Rußmodell für Strömungscodes, Gefrierstudien in einer Aerosolkammer, In-situ chemische Analyse von Aerosolpartikeln, Zirrenmodul in einem Klimamodell), konsequent

eingesetzt, was neben der hohen wissenschaftlich-technischen Kompetenz der Partner zu den guten Erfolgsaussichten (Zielerreichung) beiträgt.

Zum Projektende liegen neben einer Vielzahl neuer Erkenntnisse aus Messungen im Labor und in der Atmosphäre numerische Programme zur Brennkammersimulation mit optimiertem Rußmodul sowie ein Aerosol-Wolken-Strahlungsmodul zur Klimasimulation vor, mit dem der Einfluß des globalen Luftverkehrs auf die Bewölkung und das Klima bewertet wird.

### Begründung

- Hohe Bedeutung für die langfristige Entwicklung eines umweltverträglichen Luftverkehrs
- Potentiell großer Effekt von Veränderungen von Zirren auf das Klima
- Große wissenschaftliche Unsicherheiten im Stand des Wissens zur Wirkung von Aerosolen auf Zirren
- Basis für die Akquisition von Drittmitteln (u.a. EU; DFG, BMBF);
- strategische Voraussetzung für die Auswahl als zukünftiges Kompetenzzentrum oder CoE
- Vernetzung der DLR-Aktivitäten innerhalb des DLR, im nationalen (HGF-Programmatik, MPG, Universitäten) und internationalen Rahmen;
- langfristige Stärkung der DLR-Position im Bereich der Rußforschung und der Umweltvorsorgeforschung.

### Laufzeit und Umfang

- 1.1.2004 – 31.12.2007, Projektleitung liegt bei PA
- 3 Hauptarbeitspakete (HAP) mit 11 Arbeitspaketen (AP), davon 7 PD-L und 3 PD-R zugeordnet (eines wird extern durch FZK finanziert)

### Projektstruktur

HAP 1	Rußaerosol
	AP 1.1 Messung und Modellierung
	AP 1.2 Globales Rußkataster
HAP 2	Aerosole und Zirren
	AP 2.1 In-situ Messungen
	AP 2.2 Spurenstoffverteilung
	AP 2.3 Globale Fernerkundung
	AP 2.4 Gefrierexperimente
HAP 3	Klima
	AP 3.1 Bildungsprozesse
	AP 3.2 Strahlungsprozesse
	AP 3.3 Bedeckungsgrad
	AP 3.4 Globale Modellierung
AP 4.1	Controlling

Beteiligte Institute

<i>Institut</i>	<i>HAP</i>
DLR Institut für Verbrennungstechnik (VT)	1
DLR Institut für Antriebstechnik (AT) in Kooperation mit VF-VL	1
DLR Institut für Physik der Atmosphäre (PA) in Kooperation mit FB und DFD	2, 3
Externe HGF Partner: FZK-IMK3, FZJ-ICG1, AWI Sektion Physik	1, 2
Sonst. Partner: U Dalhousie, U Stockholm, LaMP, MPIs Meteorologie, Kernphysik, Chemie und weitere.	1, 2, 3

Ressourcen

<i>Institut</i>	<i>PJ</i>	<i>SA (k€)</i>	<i>LI (k€)</i>	<i>Großanlagen</i>
VT	12	360	150	HBK-S, Großrechner
AT	4	40		
PA	42	330	250	Falcon, Großrechner
<i>Gesamt</i>	<i>58</i>	<i>880</i>	<i>400</i>	

Zusätzlich FB 500 k€ für zwei Flugmeßkampagnen und IKT 2000 k€ (VT 500 k€, PA 1500 k€) für Großrechner.

Detailänderungen wie mit PD-L/-R am 26.5.2003 ausgehandelt werden zur Zeit mit den Partnern besprochen.

Abdeckung des 50% Anteils der laufenden EU Projekte PARTS, CARIBIC und TROCCINOX; Anträge für weitere EU-Projekte existieren oder werden vorbereitet (SCOUT; QUANTIFY, VATICAN und eventuell weitere) und sollen bei Bewilligung eingebunden werden.

Sachmittel: Reisekosten, Publikationskosten, Kampagnenkosten, sonst. Betriebs- und Instandhaltungskosten; Investitionen: flugzeuggetragenes Stickoxidmeßsystem, Brennkammerprüfstände, Rechner.

Oberpfaffenhofen, 5. Juni 2003

Bernd Kärcher und Ulrich Schumann

