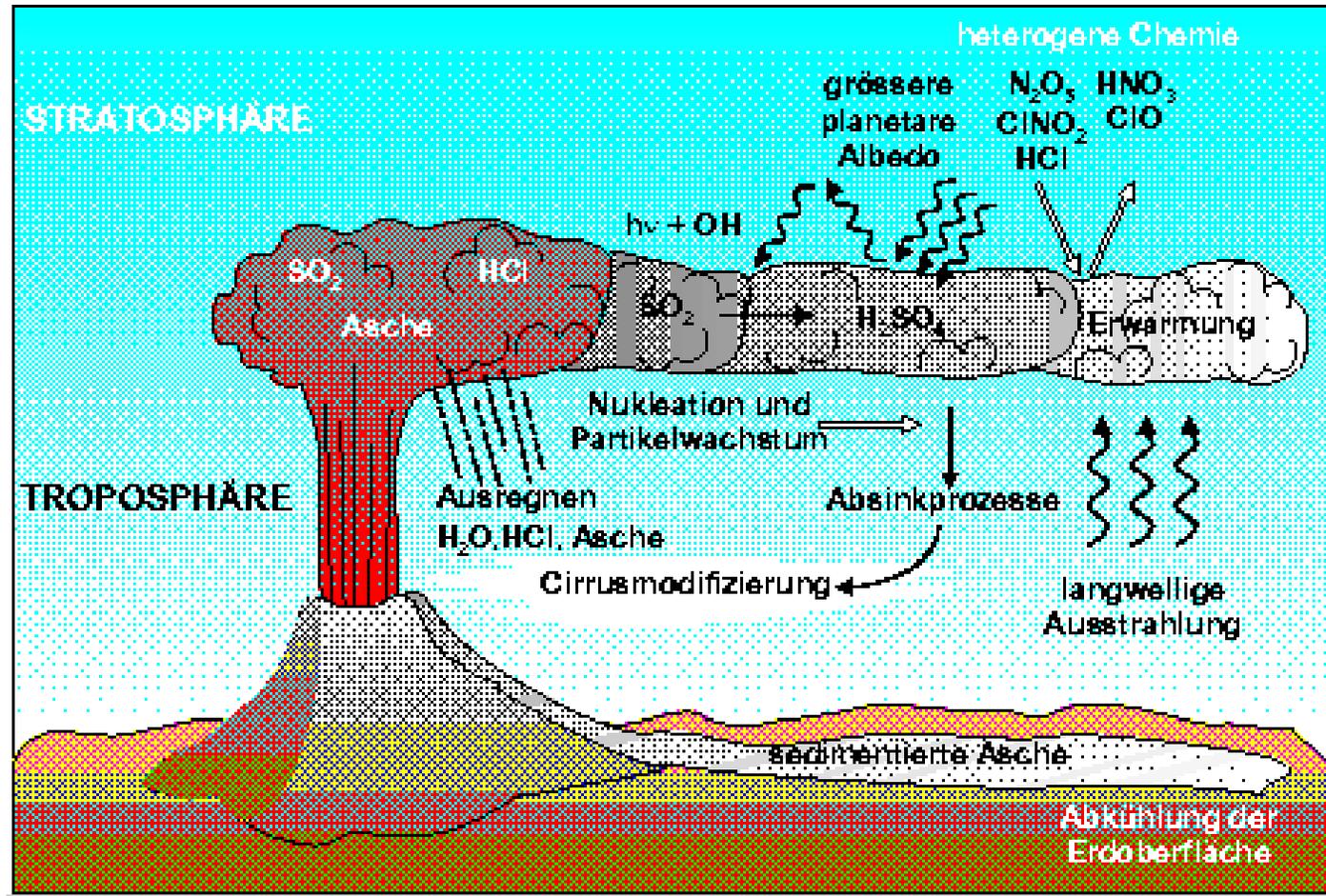


# Kapitel 4

## Chemische Zusammensetzung der Troposphäre und stratosphärische Aerosole



# Kapitel 4: Gliederung

- Einleitung
- Chemische Zusammensetzung der Troposphäre
- Herkunft stratosphärischer Aerosole
- Bedeutung stratosphärischer Aerosole

# Einleitung

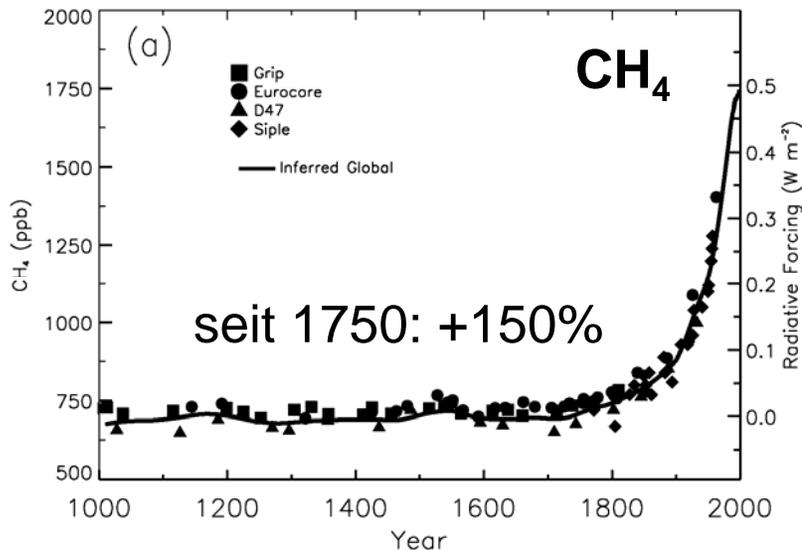
- Viele chemische Substanzen in der Stratosphäre haben ihre Quellen in der Troposphäre.
- Jede Änderung der chemischen Zusammensetzung der Troposphäre kann die chemische Zusammensetzung der Stratosphäre beeinflussen.
- Die chemischen Substanzen werden entweder direkt in der Troposphäre emittiert (die meisten davon nahe oder direkt an der Erdoberfläche) oder sie sind Oxidationsprodukte der emittierten Substanzen.

# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

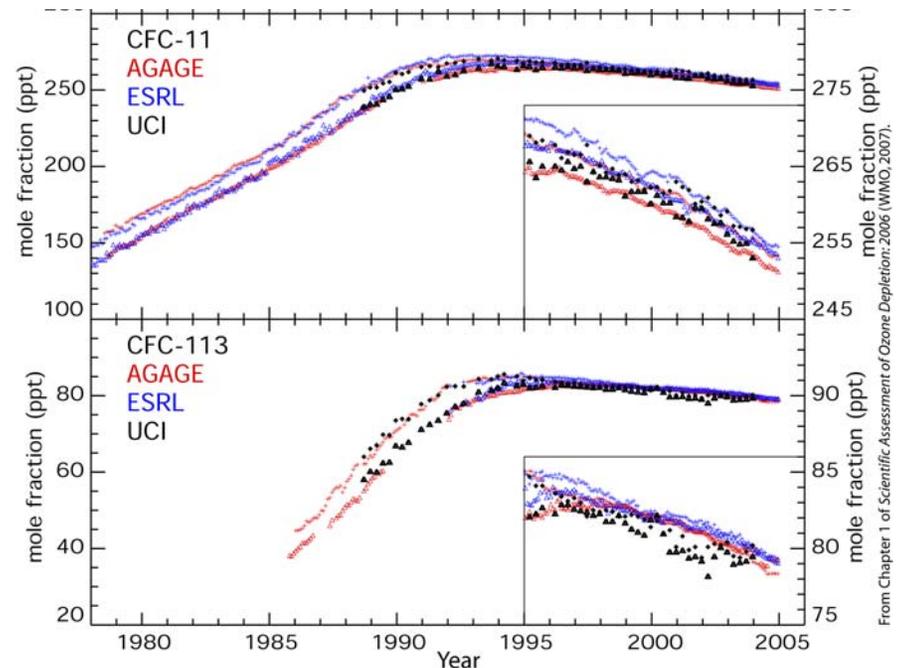
- Die bedeutendsten Quellgase für stratosphärischen Wasserstoff, Halogene (Cl, Br) und Schwefel nicht-vulkanischen Ursprungs sind langlebige Substanzen ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ , organische Halogengase wie zum Beispiel FCKWs, Halone und Kohlenstoffsulfidoxid, engl. Carbon Oxide Sulfide: COS).
- Bodenemissionen von kurzlebigen Substanzen ( $\text{SO}_2$ , Dimethylsulfid, engl. Dimethyl Sulfide: DMS) sind ebenfalls wichtige Quellen von Schwefel in der Stratosphäre sowie natürlich auch große vulkanische Eruptionen.

# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

- Langzeitige Anstiege der Konzentrationen von  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  und FCKWs wurden durch den Anstieg anthropogener Emissionen verursacht.
- Trotzdem haben die Emissionen der meisten stratosphärischen Quellgase eine bedeutende natürliche Komponente.



**$\text{N}_2\text{O}$ -Anstieg seit 1750: +16%**



# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

- Beispiel: Natürliche Emissionen machen etwa ein Drittel der CH<sub>4</sub> Quellen aus, mehr als die Hälfte der N<sub>2</sub>O Quellen (IPCC, 2001) und sie sind die dominierende Quelle für Carbonylsulfid (engl. carbonyl sulfide: OCS) (SPARC, 2006).

SPARC (Stratospheric Processes And their Role in Climate), *SPARC Assessment of Stratospheric Aerosol Properties (ASAP)*, edited by L. Thomason und T. Peter, *World Climate Research Program Report 124, SPARC Report 4*, 346 pp., Verrières le Buisson, France, 2006.

- Da natürliche Quellen sicherlich durch Klimaänderungen beeinflusst sind (Änderungen der Temperatur, der Niederschläge, der Vegetation), ist es wichtig ihre Empfindlichkeit auf Klimaänderungen abzuschätzen, um diesen Effekt bei Vorhersagen ihrer zukünftigen Entwicklung zu berücksichtigen.

# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

- Natürliche Emissionen repräsentieren auch eine große Quelle von wichtigen kurzlebigen Substanzen, wie zum Beispiel die NO Emissionen aus dem Boden und durch Blitze, oder Emissionen von nicht-Methankohlenwasserstoffen (engl. non-methane hydrocarbons: NMHC; zum Beispiel Isopren).
- Im Kapitel 2 des WMO Ozonberichts (2007) findet man Details zu den Quellen und dem Transport von halogenierten kurzlebigen Substanzen sowie ihrer Bedeutung für die Stratosphäre. Auch viele dieser Substanzen sind meistens natürlichen Ursprungs.

# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

- Die Lebenszeiten dieser kurzlebigen Substanzen sind im Vergleich zu den Transportzeiten derart, dass nur ein Bruchteil der Bodenemissionen die Stratosphäre erreicht.
- Sie beeinflussen auch die chemische Zusammensetzung der Troposphäre und somit potentiell auch die Lebenszeiten anderer Spurengase; zum Beispiel durch Änderungen der Konzentration des atmosphärischen Hydroxylradikals (engl. hydroxyl radical: OH).

# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

- In den letzten Jahren wurden bei der Abschätzung der Klimasensitivität natürlicher Emissionen Fortschritte erzielt.
- Beispiel: Die Emissionen von CH<sub>4</sub> aus Feuchtgebieten könnten bei einem Temperaturanstieg von 1°C um 20% anwachsen (Walter und Heimann, 2000).

Walter, B.P., und M. Heimann, A process-based, climate-sensitive model to derive methane emissions from natural wetlands: Application to five wetland sites, sensitivity to model parameters, and climate, *Global Biogeochem. Cycles*, 14 (3), 745-765, 2000.

- Die Emissionen kurzlebiger Substanzen, zum Beispiel biogene Kohlenwasserstoffe, würden bei einem Temperaturanstieg ebenfalls anwachsen.

# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

- Es ist ausgesprochen schwierig die durch den Klimawandel verursachten Änderungen der natürlichen Emissionen zu quantifizieren, da die Temperatur nicht der einzig bestimmende Faktor ist.
- Andere Faktoren spielen auch eine Rolle: Wasserspiegel, Bodenfeuchte, Vegetationsgrad, biogene Produktivität oder Freisetzung atmosphärischer Schadstoffe. Der Einfluss und die Bedeutung ist abhängig von der jeweils emittierten Substanz.
- Vernachlässigt man die Landnutzungsänderungen, so erwartet man einen Anstieg der meisten natürlichen Emissionen aufgrund der Erwärmung der Erdoberfläche.

# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

- Für die Stratosphäre am wichtigsten sind die klimabedingten Anstiege der CH<sub>4</sub> und N<sub>2</sub>O Emissionen.
- Beispiel: Ein weiterer Anstieg der CH<sub>4</sub> Konzentration würde die Erholung der Ozonschicht beschleunigen, wohingegen ein Anstieg der N<sub>2</sub>O Konzentration zu einem verlangsamten Ozonanstieg führen würde (Randeniya et al., 2002; Chipperfield und Feng, 2003).

Randeniya, L.K., P.F. Vohralik, und I.C. Plumb, Stratospheric ozone depletion at northern mid latitudes in the 21<sup>st</sup> century: the importance of future concentrations of greenhouse gases nitrous oxide and methane, *Geophys. Res. Lett.*, 29 (4), 1051, 2002.

Chipperfield, M.P., und W. Feng, Comment on: Stratospheric Ozone Depletion at northern mid-latitudes in the 21<sup>st</sup> century: The importance of future concentrations of greenhouse gases nitrous oxide and methane, *Geophys. Res. Lett.*, 30 (7), 1389, doi: 10.1029/2002GL016353, 2003.

# Chemische Zusammensetzung der Troposphäre

- Klimaänderungen können auch wichtige Transportprozesse verändern, die den Austausch chemischer Substanzen zwischen der Troposphäre und der Stratosphäre bestimmen.
- Der vertikale Transport von Bodenemissionen in den Bereich der Tropopause ist vor allem abhängig von der Stärke der konvektiven Aktivität.
- Der Fluss von troposphärischer Luft in die Stratosphäre wird vor allem durch die Stärke des (tropischen) Aufsteigens von Luftmassen aus der Troposphäre bestimmt. Dieses Aufsteigen ist direkt mit der Stärke der Brewer-Dobson Zirkulation verbunden (siehe Kapitel 3).

# Herkunft stratosphärischer Aerosole

- Schwefelsubstanzen, die aus Bodenemissionen von nicht-explosiven Vulkanen stammen ( $\text{SO}_2$ , COS) sind wichtige Quellen für die stratosphärische Aerosolbelastung (Notholt et al., 2005).

Notholt, J., B.P. Luo, S. Fueglistaler, D. Weisenstein, M. Rex, M.G. Lawrence, H. Bingemer, I. Wohltmann, T. Corti, T. Warneke, R. von Kuhlmann, und T. Peter, Influence of tropospheric  $\text{SO}_2$  emissions on particle formation and the stratospheric humidity, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L07810, doi: 10.1029/2004GL022159, 2005.

- Stratosphärische Aerosole haben einen direkten Strahlungseinfluss, der zu einer Abnahme der Bodentemperatur führt, da mehr kurzwellige Strahlung in die Atmosphäre zurückreflektiert wird.

# Herkunft stratosphärischer Aerosole

- Obwohl sich die stratosphärische, nicht-vulkanische Aerosolhintergrundverteilung in dem Zeitraum zwischen 1970 und 2004 nicht signifikant verändert hat (Deshler et al., 2006; siehe auch SPARC, 2006), könnte sie in der Zukunft ansteigen, wenn sich die konvektive Aktivität erhöht (Pitari et al., 2002), da Konvektion der Schlüsselprozess für den Transport der kurzlebigen Spezies  $\text{SO}_2$  vom Erdboden in die obere Troposphäre und untere Stratosphäre ist.

Deshler, T., R. Anderson-Sprecher, H. Jäger, J. Barnes, D.J. Hofmann, B. Clemesha, D. Simonich, M. Osborn, R.G. Grainger, und S. Godin-Beekmann, Trends in nonvolcanic component of stratospheric aerosol over the period 1971-2004, *J. Geophys. Res.*, 111, D01201, doi: 10.1029/2005JD006089, 2006.

Pitari, G., E. Mancini, V. Rizi, und D.T. Shindell, Impact of future climate and emission changes on stratospheric aerosols and ozone, *J. Atmos. Sci.*, 59 (3), 414-440, 2002.

# Herkunft stratosphärischer Aerosole

- Vulkanisches SO<sub>2</sub>, welches in die Stratosphäre eingetragen wird, oxidiert dort zu Schwefelsäure, die kondensiert und Aerosole bildet, auf denen dann wiederum heterogene Reaktionen ablaufen.
- Vulkanische Eruptionen haben einen starken Einfluss auf die thermische Struktur der unteren Stratosphäre, da das vulkanische Aerosol einfallende solare Strahlung zurück streut und solare (nah-) infrarot und terrestrische infrarot (Wärme-) Strahlung absorbiert (z.B. Stenchikov et al., 1998; Timmreck et al., 2003).

Stenchikov, G.L., I. Kirchner, A. Robock, H.-F. Graf, J.C. Artuña, R.G. Grainger, A. Lambert, und L. Thomason, Radiative forcing from the 1991 Mount Pinatubo volcanic eruption, *J. Geophys. Res.*, 103 (D12), 13837-13857, 1998.

Timmreck, C., H.-F. Graf, und B. Steil, Aerosol chemistry interactions after the Mt. Pinatubo eruption, in *Volcanism and the Earth's Atmosphere*, edited by A. Robock, and C. Oppenheimer, *Geophysical Monograph 139*, 214-225, American Geophysical Union, Washington, D.C., 2003.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Heterogene Chemie, die auf den Aerosoloberflächen abläuft, beeinflusst die Ozonkonzentration; dies führt zu einem zusätzlichen (indirekten) Strahlungseffekt, der wiederum von der atmosphärischen Chlorkonzentration abhängt.
- Zusätzlich führen die daraus resultierenden geänderten meridionalen Temperaturprofile unter Umständen im Winter zu kälteren Polarwirbeln.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Der Einfluss eines Vulkanausbruchs auf die Ozonkonzentration hängt von der Menge und dem Material der Eruption ab, vor allem von der Schwefelmenge, und ob das Eruptionsmaterial die Stratosphäre erreicht.
- Auch ist die geographische Breite der Eruption sowie die Phase der QBO von Bedeutung.
- Die durch die Eruptionswolke erreichte Höhe hängt von der Explosivität der Eruption ab, nicht von der Lage des Vulkans.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Der Auswurf eines tropischen Vulkans wird nach oben verfrachtet und dann über die Brewer-Dobson Zirkulation polwärts transportiert.
- Aus diesem Grund verbreitet sich die Asche- (Gas-) Wolke weiter in einem Großteil der Stratosphäre mit einer langen Verweilzeit; entsprechende Auswürfe durch Eruptionen in mittleren und hohen Breiten werden deutlich schneller zurück in die Troposphäre verfrachtet, über den absinkenden "Ast" der Brewer-Dobson Zirkulation.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Der Einfluss zukünftiger großer Vulkaneruptionen wird von der Chlorkonzentration abhängen.
- Für geringe Chlorkonzentrationen kann die heterogene Chemie zu einem Anstieg der Ozonkonzentration in der Stratosphäre führen, wohingegen es bei hohen Chlorwerten (wie die in den letzten Jahren) zu einem zusätzlichen Ozonabbau kommt (Tie und Brasseur, 1995).

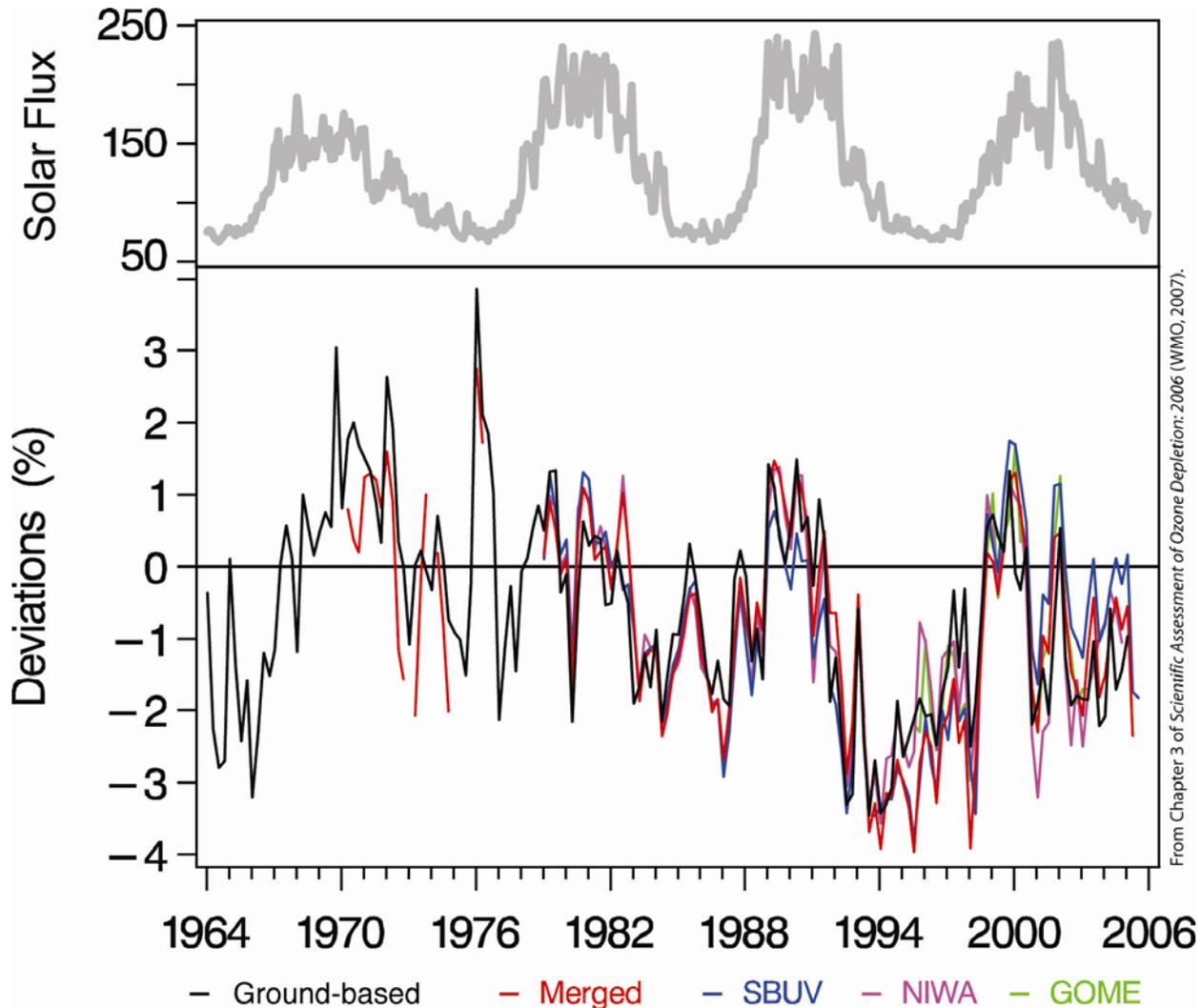
Tie, X., und G. Brasseur, The response of stratospheric ozone to volcanic eruptions: Sensitivity to atmospheric chlorine loading, *Geophys. Res. Lett.*, 22 (22), 3035-3038, 1995.

- Darüber hinaus kann das vulkanische Aerosol die Photolyseraten und somit die Ozonkonzentrationen verändern (Timmreck et al., 2003).

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Die Ergebnisse von neuesten Simulationen mit CCMs sind konsistent mit der Studie von Tie und Brasseur.
- Nach der Eruption des Vulkans Agung im Jahre 1963 war die Ozongesamtmenge deutlich reduziert, vor allem in den Tropen (siehe folgende Abbildung).

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole



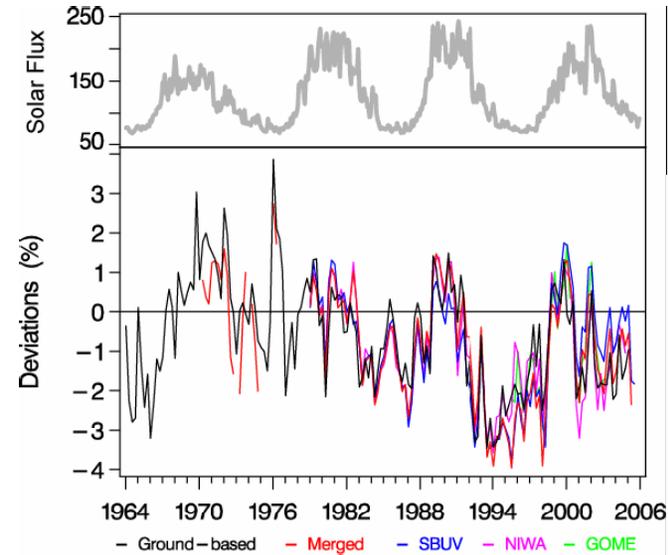
10,7 cm Solarstrahlung und Ozonanomalien in 25°S-25°N.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

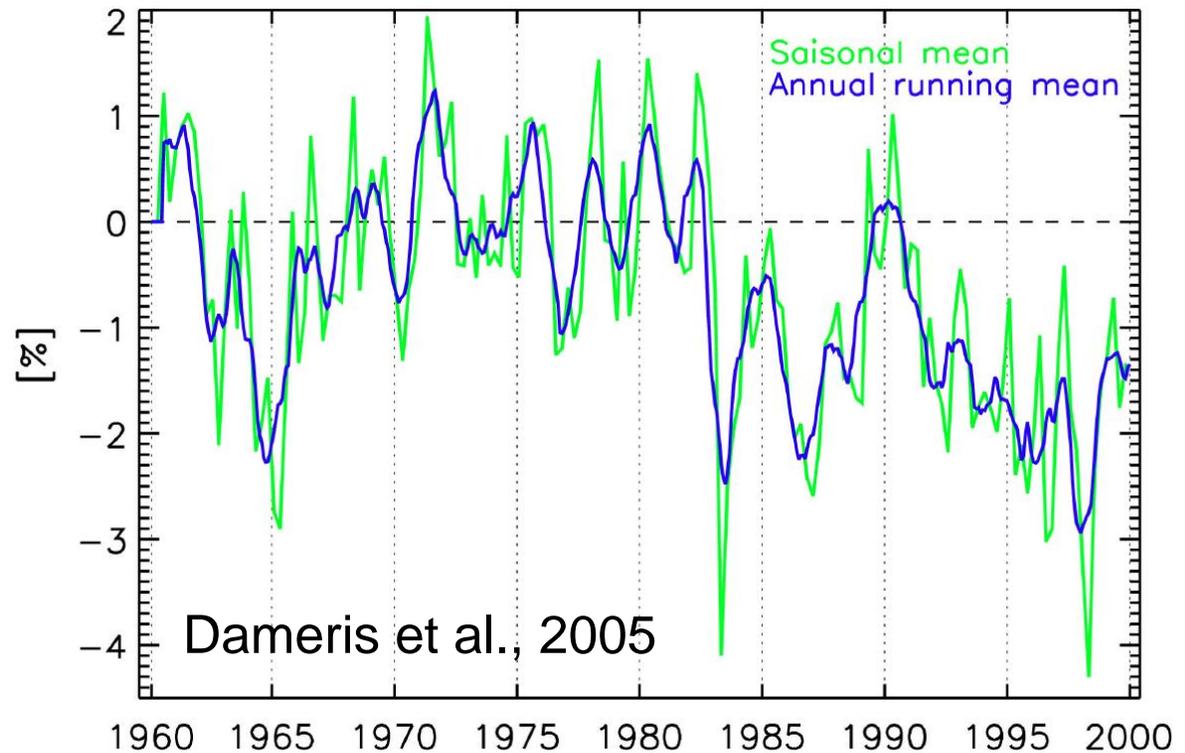
- Da die Chlorbeladung der Atmosphäre zu dieser Zeit gering war, spielte der Einfluss der Sonnenaktivität eine besondere Rolle.
- Beispiel: Das CCM E39C berechnete im Vergleich mit Beobachtungen die Abnahme der Ozonkonzentration in den Tropen um das Jahr 1965 richtig; hier wurde der Einfluss des 11-jährigen Sonnenaktivitätszyklus, der 1965 minimale Sonnenaktivität zeigte, berücksichtigt (Dameris et al., 2005).

Dameris, M., V. Grewe, M. Ponater, R. Deckert, V. Eyring, F. Mager, S. Matthes, C. Schnadt, A. Stenke, B. Steil, C. Brühl, und M.A. Giorgetta, Long-term changes and variability in a transient simulation with a chemistry-climate model employing realistic forcing, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2121-2145, 2005.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole



Beobachtung!



Modellrechnung!

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Im Anschluss an die großen Eruptionen von El Chichón (1982) und Mt. Pinatubo (1991), als die atmosphärische Chlorbeladung deutlich höher war und die Sonnenaktivität nahe dem Maximum, nahm die Ozonkonzentration in den Folgemonaten signifikant ab (in Beobachtungen und Modellrechnungen); nach zwei bis drei Jahren waren die Werte wieder "normal".
- Die in vielen Modellen simulierte globale mittlere Ozonabnahme lag bei etwa 2%, ähnlich wie beobachtet (Eyring et al., 2006; Fioletov et al., 2002; WMO, 2003).

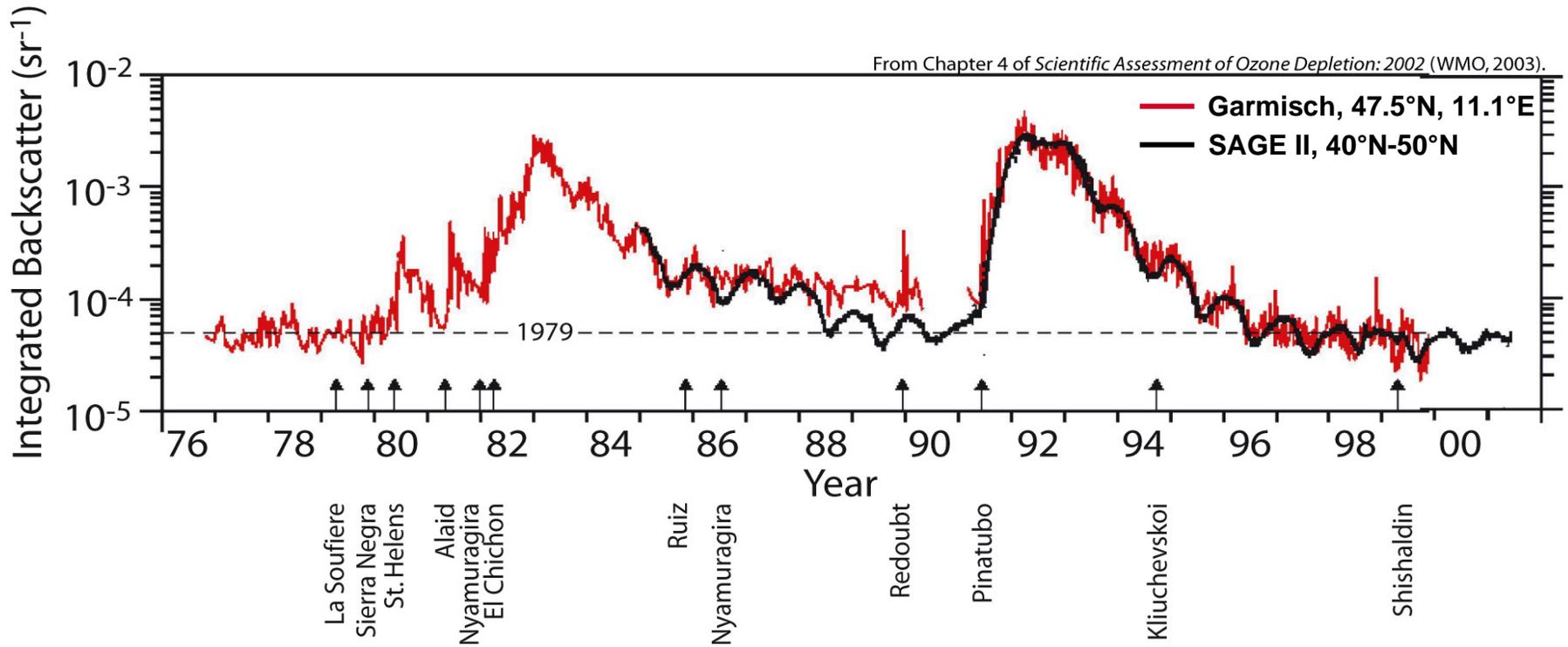
Eyring, V., et al., Assessment of temperature, trace species, and ozone in chemistry-climate model simulations of the recent past, *J. Geophys. Res.*, 111, D22308, doi:10.1029/2006JD007327, 2006.

Fioletov, V.E., G.E., Bodeker, A.J. Miller, R.D. McPeters, und R. Stolarski, Global and zonal total ozone variations estimated from ground-based and satellite measurements: 1964-2000, *J. Geophys. Res.*, 107 (D22), 4647, doi: 10.1029/2001JD001350, 2002.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

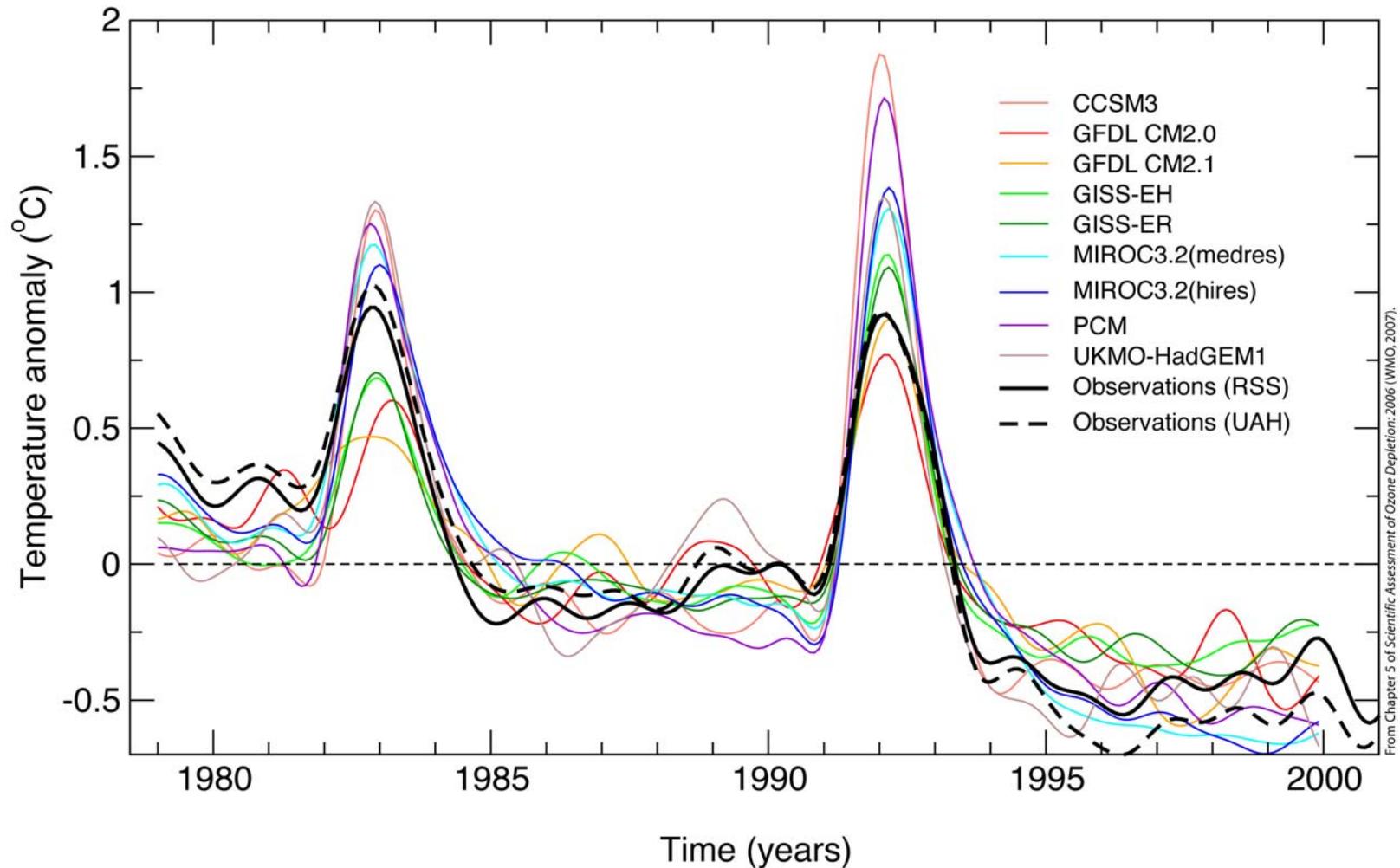
- In AGCM und CCM Simulationen ist die berechnete Temperaturstörung in der unteren Stratosphäre nach den Eruptionen von El Chichón und Mt. Pinatubo meist größer als 1 K, wohingegen die Beobachtungen einen Temperaturanstieg von etwa 1 K (Jahresmittel) zeigen (siehe nachfolgende Abbildungen).

# Stratosphärische Aerosole

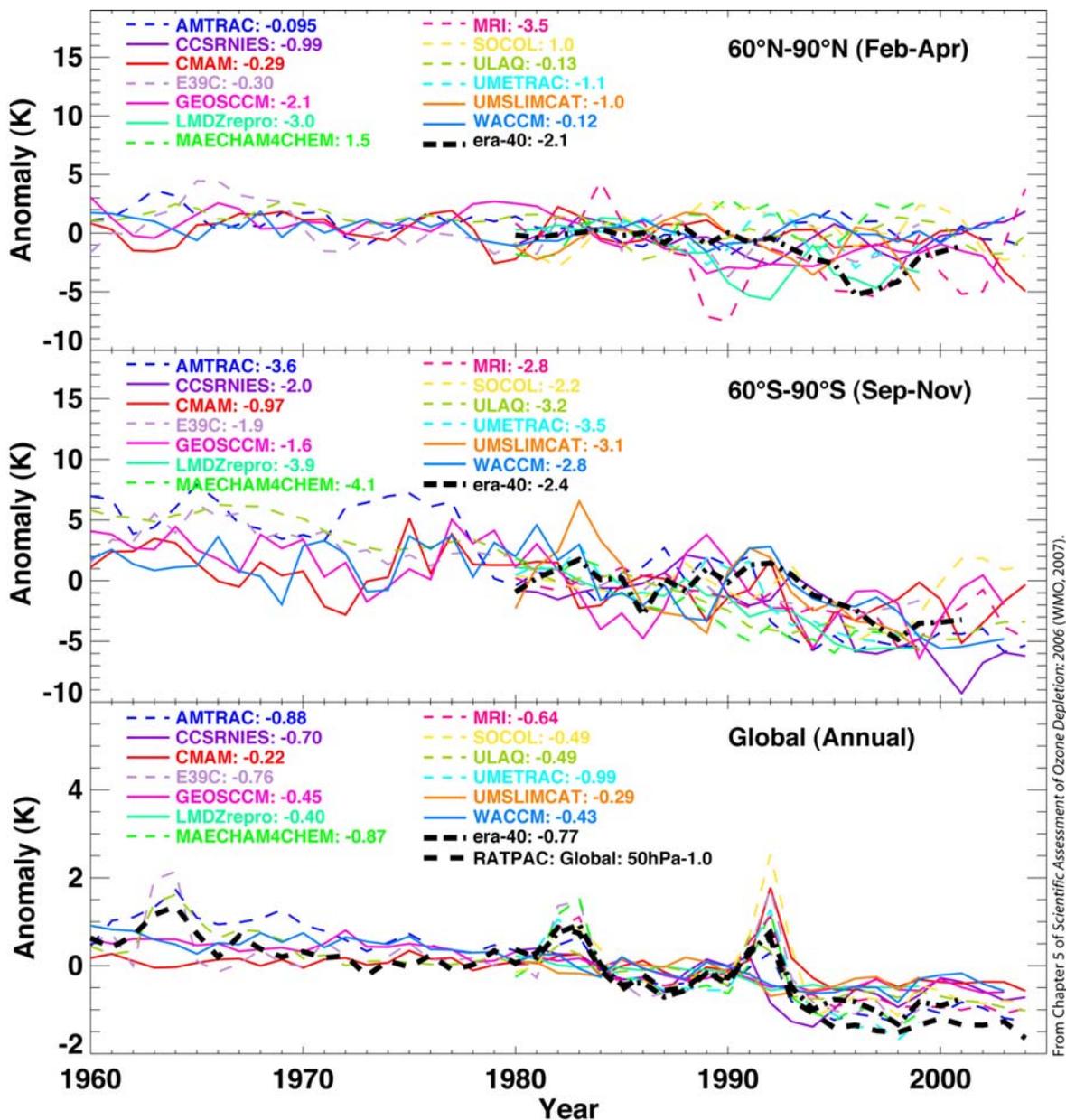


# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

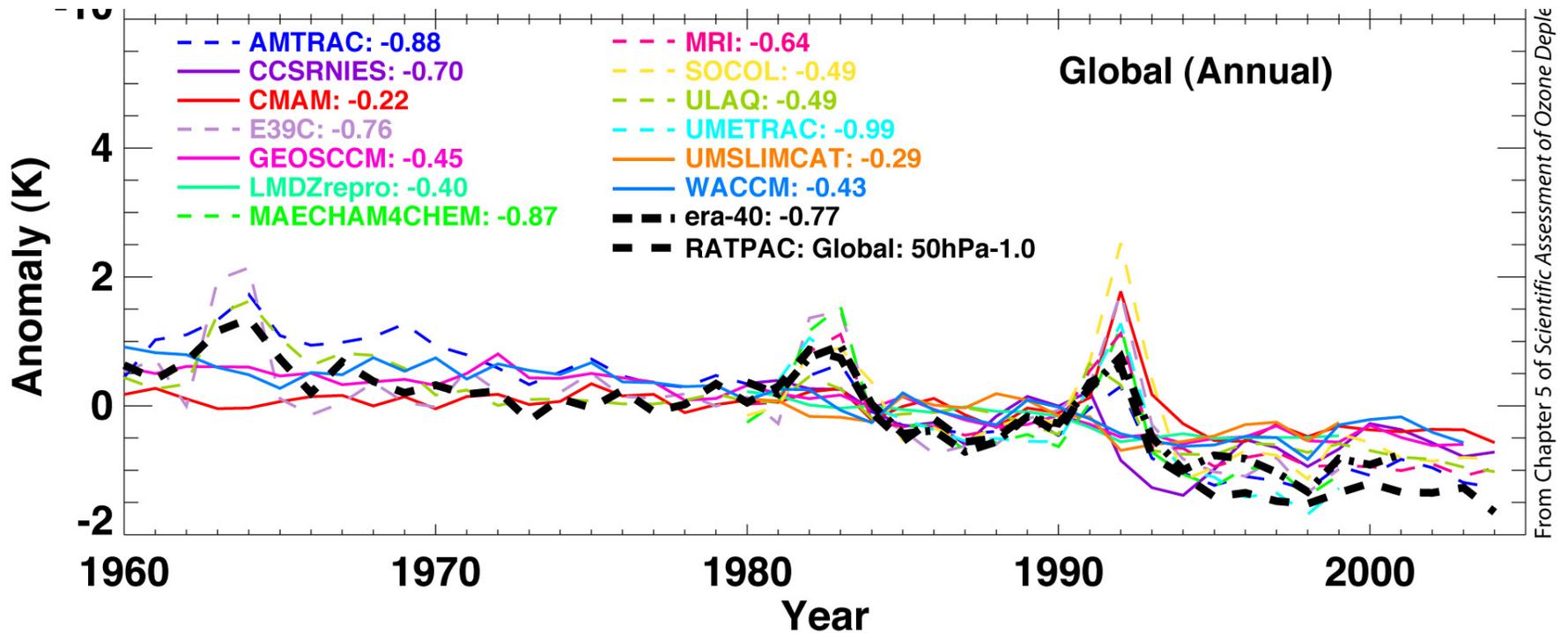
## Simulated and Observed Stratospheric Temperature Changes



# Bedeutung stratosphärischer Aerosole



# Bedeutung stratosphärischer Aerosole



# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

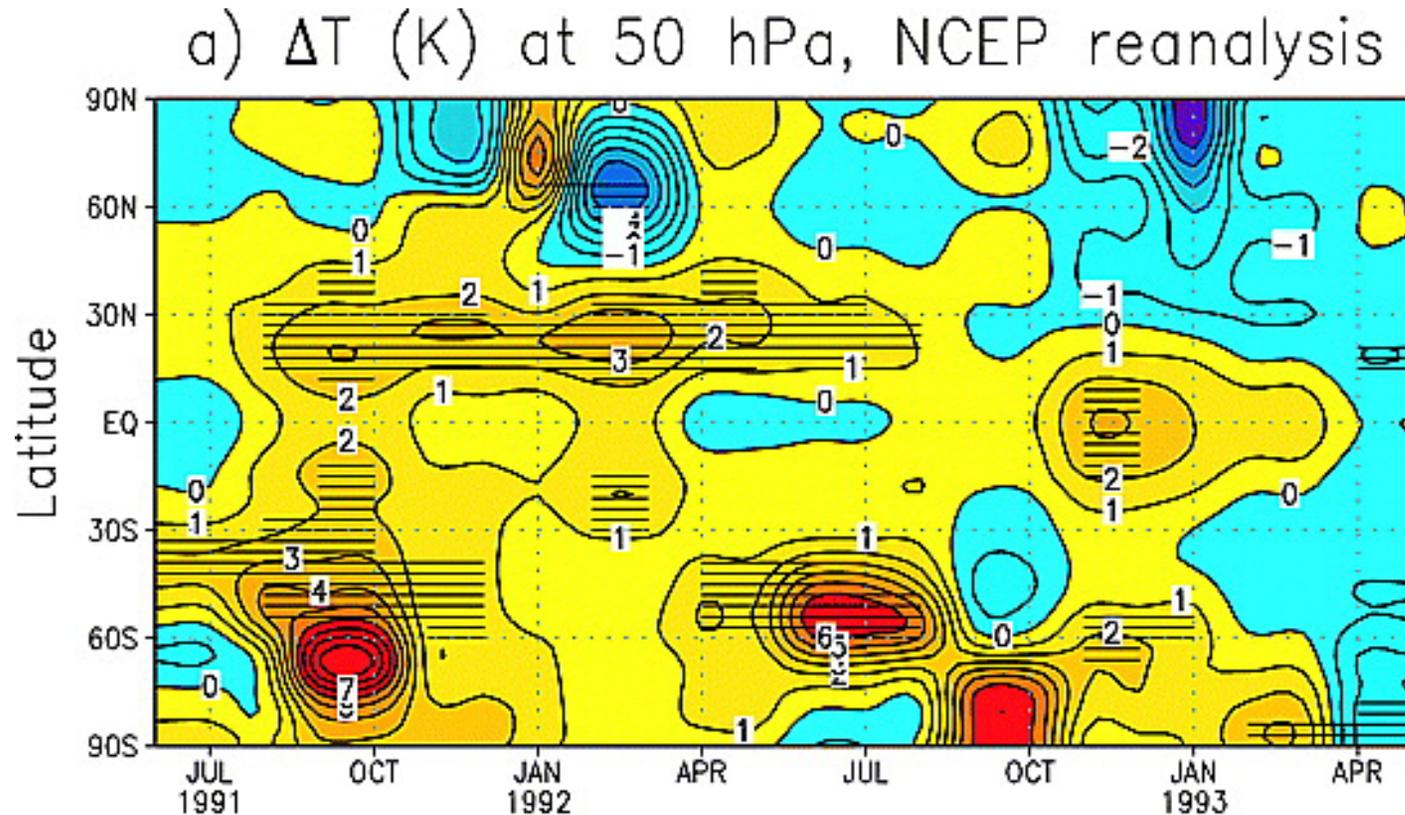
- Der Temperatureffekt ist wichtig, da dieser zu einem großen Teil die Störung in der Wasserdampfkonzentration bestimmt. Dies wiederum hat einen Einfluss auf die Ozonchemie in der unteren Stratosphäre (siehe Kapitel 12) sowie die Abkühlungsraten in der unteren Stratosphäre (siehe Kapitel 5).

Ramaswamy, V., M.D. Schwarzkopf, W.J. Randel, B.D. Santer, B.J. Soden, und G.L. Stenchikov, Anthropogenic and natural influences in the evolution of lower stratospheric cooling, *Science*, 311 (5764), 1138-1141, doi: 10.1126/science.1122587, 2006.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Temperaturvariationen, die durch vulkanische Eruptionen verursacht werden, sind für einige Jahre offensichtlich, mit einer fast überall zu beobachtenden Erwärmung; jedoch zeigen die Ergebnisse von Modellstudien, dass das von Vulkanen verursachte Temperatursignal recht unterschiedlich simuliert wird (siehe vorherige Abbildungen und Eyring et al., 2006).

# Stratosphärische Erwärmung durch Aerosole



Zonal mean lower stratospheric temperature anomalies (K) at 50 hPa following the Mt. Pinatubo eruption on 15 June 1991. Calculated from NCEP reanalysis with respect to the mean for the years 1985–1990. The hatching corresponds to the 90% confidence level obtained for observations by a local Student's *t* test (Stenchikov et al., 2002).

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Sulfataerosole und Asche, die durch vulkanische Eruptionen in die Stratosphäre eingebracht werden, verursachen eine troposphärische Abkühlung (z.B. Wigley et al., 2005; Yokohata et al., 2005), obwohl Aschepartikel aufgrund der Schwerkraft absinken und somit nur eine kurze Verweilzeit in der Stratosphäre haben.

Wigley, T.M.L., C.M. Amman, B.D. Santer, und S.C.B. Raper, Effect of climate sensitivity on the response to volcanic forcing, *J. Geophys. Res.*, 110, D09107, doi: 10.1029/2004JD005557, 2005.

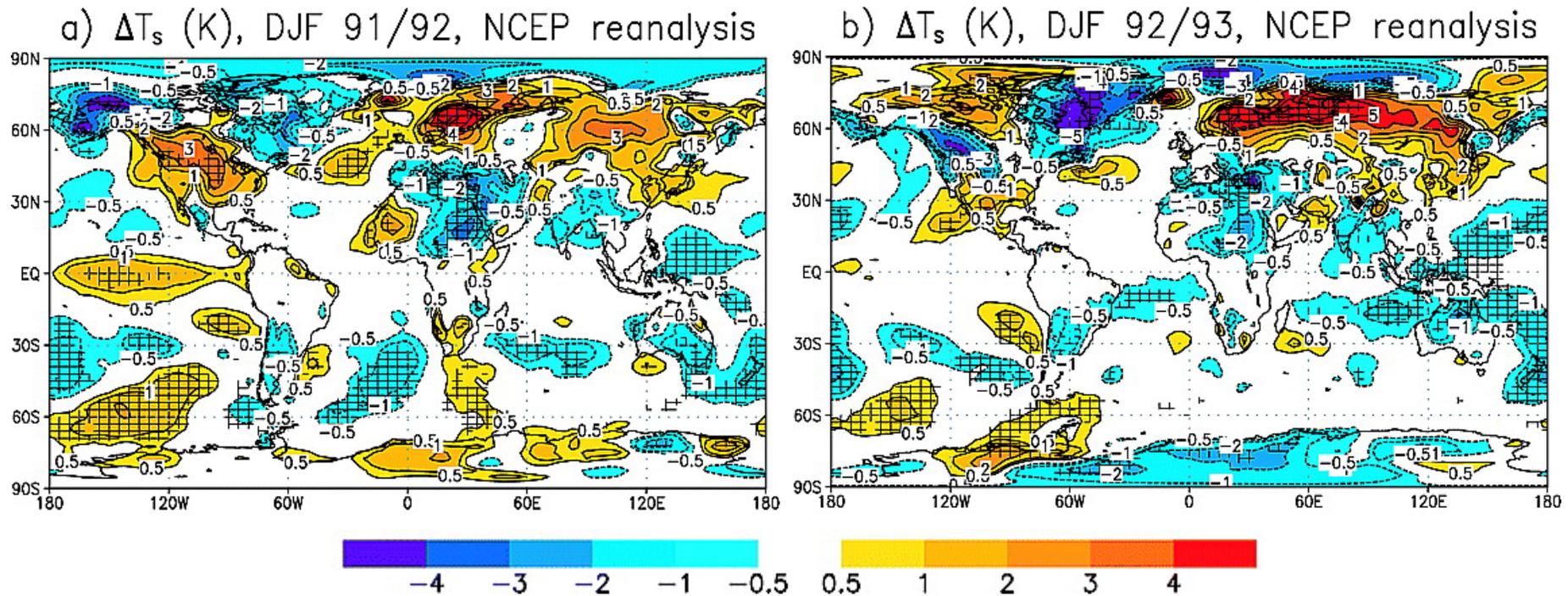
Yokohata, T., S. Emori, T. Nozawa, Y. Tsusima, T. Ogura, und M. Kimoto, Climate response to volcanic forcing: Validation of climate sensitivity of a coupled atmosphere-ocean circulation model, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L21710, doi: 10.1029/2005GL023542, 2005.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Aufgrund einer troposphärischen Abkühlung erwartet man eine Änderung in der troposphärischen Zirkulation und auch in der Wechselwirkung zwischen der Troposphäre und der Stratosphäre (Stenchikov et al., 2002).

Stenchikov, G., A. Robock, V. Ramaswamy, M.D. Schwarzkopf, K. Hamilton, und S. Ramachandran, Arctic Oscillation response to the 1991 Mount Pinatubo eruption: Effects of volcanic aerosols and ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, 107 (D24), 4803, doi: 10.1029/2002JD002090, 2002.

# Troposphärische Abkühlung durch Aerosole



Seasonally averaged anomalies of the surface air temperature (K) obtained from NCEP reanalysis data for the winters (DJF) of 1991/1992 (a) and 1992/1993 (b). Anomalies are calculated with respect to the mean for the years 1985-1990. The hatching corresponds to the 90% confidence level (Stenchikov et al., 2002).

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Auf der Grundlage historischer Aufzeichnungen von Vulkanausbrüchen ist es sehr wahrscheinlich, dass in den nächsten 20 bis 30 Jahren ein großer Vulkanausbruch, ähnlich dem des Pinatubo, stattfinden wird, mit gleichen Einflüssen auf die Atmosphäre (Roscoe, 2001).

Roscoe, H.K., The risk of large volcanic eruptions and the impact of this risk on future ozone depletion, *Nat. Hazards*, 23 (2-3), 231-246, 2001.

- Die letzten 50 Jahre mit drei so großen Vulkanausbrüchen war eher unüblich. Sehr viel größere Eruptionen, wie zum Beispiel der des Toba vor 74,000 Jahren, sind theoretisch möglich; die "Erholungszeit" der Atmosphäre kann dann etwa 10 Jahre dauern (Bekki et al., 1996).

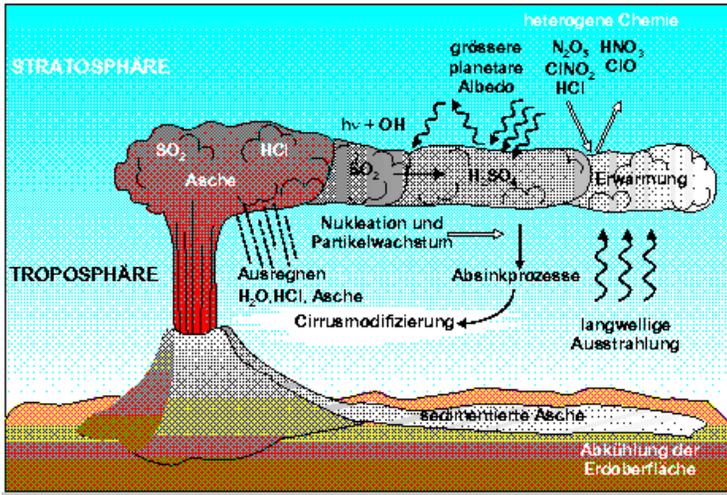
Bekki, S., J.A. Pyle, W. Zhong, R. Toumi, J.D. Haigh, und D.M. Pyle, The role of microphysical and chemical processes in prolonging the climate forcing of the Toba eruption, *Geophys. Res. Lett.*, 23 (19), 2669-2672, 1996.

# Bedeutung stratosphärischer Aerosole

- Modellstudien von Rosenfield (2003), in denen ein dem Pinatubo vergleichbare Eruptionen etwa alle 10 Jahre für den Zeitraum zwischen 2010 und 2050 angenommen wird, zeigen, dass dadurch die langzeitliche Entwicklung der Ozonschicht nicht maßgeblich beeinflusst wird.

Rosenfield, J.E., Effects of volcanic eruptions on stratospheric ozone recovery, in *Volcanism and the Earth's Atmosphere*, edited by A. Robock, and C. Oppenheimer, *Geophysical Monograph 139*, American Geophysical Union, 227-236, 2003.

- Die Einflüsse auf Ozon selbst würden jeweils nur einige Jahre andauern und somit die langzeitliche Entwicklung der Erholung der Ozonschicht nicht nachhaltig beeinflussen, weil der Anstieg der Ozonkonzentrationen in den kommenden Jahren hauptsächlich durch die Halogenkonzentration bestimmt wird.



**Ende Kapitel 4**