

Endbericht

zum Verbundvorhaben

**„Konvektiver Spurengastransport in die obere Troposphäre über Europa:
Budget und Wirkung auf Chemie“ (CONTRACE)**

08.06.2004

**Dr. Caroline Forster, Dr. Andreas Stohl,
Sabine Eckhardt, Dr. Nicole Spichtinger, Dr. Paul James
Technische Universität München (TUM)
Lehrstuhl für Bioklimatologie und Immissionsforschung
Am Hochanger 13
85354 Freising**

Projektleiter: Dr. Andreas Stohl

Förderkennzeichen: 07 ATF 22

Laufzeit: 01.01.2001 – 30.06.2004

Berichtszeitraum: 01.01.2001 – 30.06.2004

1. Ziele und Aufgaben der TUM

Für CONTRACE führte der Lehrstuhl für Bioklimatologie und Immissionsforschung der TUM Transportsimulationen von Spurengasen in der Atmosphäre mit den Modellen FLEXTRA (Stohl et al., 1995) und FLEXPART (Stohl et al., 1998; Stohl and Thomson, 1999) durch. FLEXTRA berechnet 3-dimensionale Trajektorien und ist mit Hilfe von Ballontrajektorien (Baumann und Stohl, 1997) validiert worden. Es zeigte bei Simulationen des Aufsteigens von Luftmassen in warm conveyor belts (WCBs) eine sehr gute Übereinstimmung mit anderen Modellen und mit Messdaten (Stohl et al., 2001). Das Lagrange'sche Ausbreitungsmodell FLEXPART berechnet die Trajektorien von einer Vielzahl von Partikeln unter Berücksichtigung von Turbulenz und ist mit einer Konvektionsparameterisierung (Emanuel and Živković-Rothman, 1999) ausgestattet. Jedes Partikel trägt die Masse eines oder mehrerer Tracer, für die nasse und trockene Deposition sowie lineare chemische Prozesse ermittelt werden können. Für jedes Partikel ist der Zeitpunkt seiner Freisetzung bekannt, so dass die Erzeugung von Altersspektren der Tracer möglich ist. FLEXPART simulierte erfolgreich verschiedene Fälle des Interkontinentaltransports (ICT) von Schadstoffen und zeigte dabei eine sehr gute Übereinstimmung mit Messdaten (Stohl and Trickl, 1999; Forster et al., 2001; Spichtinger et al., 2001). Sowohl FLEXPART als auch FLEXTRA werden mit ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecast; ECMWF, 1995) oder mit NCEP (National Center for Environmental Prediction) GFS (Global Forecast System) Windfelddaten angetrieben. Beide Datensätze sind global, haben eine zeitliche Auflösung von 3 Stunden (Analysen um 0, 6, 12, und 18 UTC; 3 stündliche Vorhersagen um 3, 9, 15 und 21 UTC) und eine horizontale Auflösung von $1^\circ \times 1^\circ$. Die NCEP GFS Daten können frei übers Internet heruntergeladen werden und sind auf 26 vertikalen Druckniveaus zwischen 1000 hPa und 10 hPa verfügbar. Die operationellen ECMWF Daten haben 60 hybride Niveaus, die in Bodennähe der Topographie und in den obersten Levels den Druckniveaus folgen. Dazwischen liegende Schichten zeigen einen allmählichen Übergang von geländefolgenden zu druckniveaufolgenden Schichten.

Im Rahmen von CONTRACE wurden FLEXPART und FLEXTRA eingesetzt, um folgende **Ziele** zu erreichen:

- Unterstützung der Flugplanung während der Flugzeugmesskampagnen mit Hilfe von prognostischen Modellläufen
- Interpretation der Messdaten mit Hilfe von Trajektorien- und Tracermodellläufen
- Bestimmung der Häufigkeit von ausgedehnten Gebieten gealterter, verschmutzter Luftmassen über Europa, die durch WCBs oder Konvektion einige Tage zuvor aus der Grenzschicht in die obere Troposphäre transportiert worden sind
- Analyse dieser Ereignisse im Hinblick auf O_3 -Produktion und Auswaschen von NO_y

Die **Aufgaben**, die für diese Ziele während der Projektlaufzeit durchgeführt werden sollten, waren:

- Tracertransportvorhersagen mit FLEXPART und Trajektorienvorhersagen mit FLEXTRA während der CONTRACE Messkampagnen (Abschnitt 2.1)
- Hochaufgelöste Simulationen konvektiver Komplexe mit dem Wettervorhersagemodell MM5 (Abschnitt 4)
- Berechnung von Rückwärtstrajektorien (Abschnitt 2.3)
- Berechnung von Tracer-Altersspektren (Abschnitt 2.2)
- Entwicklung eines Konvektionsschemas (Abschnitt 4)
- Blitz-Tracer (Abschnitt 2.4.2)

- Modellvalidierung (Abschnitt 2.2)
- Einrichten einer WCB-Klimatologie (Abschnitt 2.5) und Transport von NO_x in WCBs (Abschnitt 2.4)
- Photochemiesimulationen mit einem Lagrange'schen Boxmodell (Abschnitt 4)

Alle obengenannten Ziele wurden während CONTRACE erreicht. Die Resultate konnten in mehreren Artikeln (siehe Liste in Abschnitt 6) in wissenschaftlichen Zeitschriften veröffentlicht werden. In Abschnitt 2 werden die wichtigsten Arbeitsschritte und Ergebnisse zur Erreichung der oben genannten Ziele erläutert. Eine Auswahl der Veröffentlichungen dazu befinden sich im Anhang dieses Berichts.

2. Wichtigste Ergebnisse der TUM

2.1. Erfolgreiche Unterstützung der Flugplanung während der Messkampagnen

Während der beiden Flugzeug-Messkampagnen vom 14. bis 29. November 2001 (CONTRACE_1) und vom 9. bis 25. Juli 2003 (CONTRACE_2) stellte TUM den Projektpartnern verschiedene Prognoseprodukte für die Flugplanung auf einer Internetseite zur Verfügung (<http://www.forst.tu-muenchen.de/EXT/LST/METEO/>)

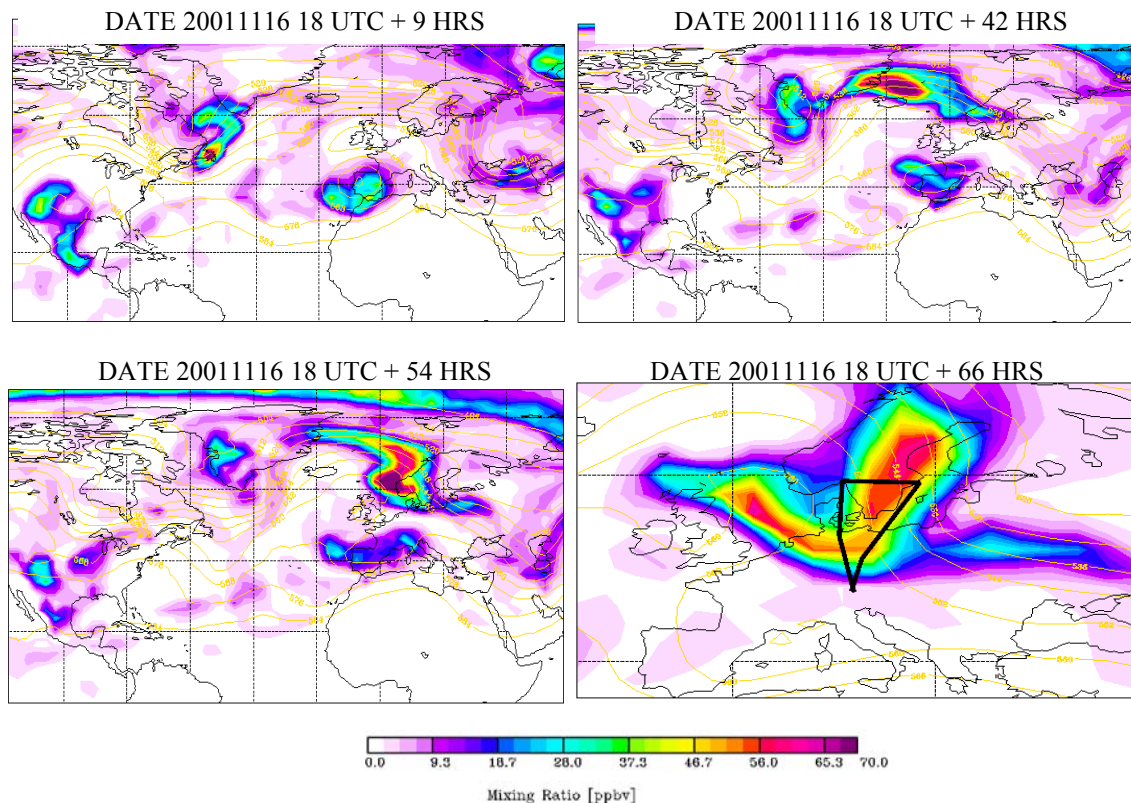


Abbildung 1: FLEXPART Vorhersagen des CO Tracer Mischungsverhältnisses (ppbv) in 500 hPa für den CONTRACE_1 Flug am 19 November 2001. Die gelben Linien repräsentieren die Höhe des Geopotentials in 500 hPa. Die schwarze Linie in der rechten unteren Abbildung ist die Flugroute der DLR Falcon, die basierend auf dieser Vorhersage geplant wurde.

[contrace/contrace_fx.html](#)). Diese Produkte umfassten meteorologische Felder (Geopotential, Bodendruck, CAPE, 500 hPa Vertikalgeschwindigkeit, Potentielle Vorticity, Tropopausenhöhe, Temperatur, relative Feuchte, Niederschlag, Bewölkung und äquivalentpotentielle Temperatur), FLEXTRA Trajektorien sowie einen nordamerikanischen und einen europäischen FLEXPART CO Tracer, deren Emissionsraten auf dem EDGAR 1990 (Olivier et al., 1996) Emissionsinventar basierten. Die Prognosen wurden während CONTRACE_1 ausschließlich mit NCEP GFS Daten

berechnet. Während CONTRACE_2 konnten jedoch mit freundlicher Unterstützung des DWD und des ECMWF zusätzlich Modellvorhersagen mit ECMWF Windfeldern erstellt werden, was einen Vergleich der GFS und der ECMWF basierten Vorhersagen ermöglichte (siehe unten). Die Prognosen deckten einen 3-Tageszeitraum ab und wurden während der Messkampagnen alle 6 Stunden, sobald die aktuellsten Windfelddaten verfügbar waren, aktualisiert. Insgesamt waren der Transfer der Windfelddaten an die TUM, die Modellläufe und das Erstellen der Grafiken für die Internetseite so organisiert, dass alle Produkte innerhalb von etwa 4 bis 5 Stunden verfügbar waren. Da FLEXPART nur den Transport und lineare Chemie simuliert, braucht es sehr viel weniger Rechenzeit als Chemietransportmodelle (CTM), die die komplexe Chemie vieler chemischer Komponenten berechnen. Wie sich während der Messkampagnen herausstellte, war die häufige Aktualisierung der TUM Vorhersagen sehr wichtig für die Planung der Flugrouten. Um größtmögliche Genauigkeit bei der Flugplanung zu erreichen, wurden die TUM Vorhersagen mit anderen Vorhersageprodukten, wie die des CTMs MATCH-MPIC des Max-Planck Instituts für Chemie in Mainz und des EURAD Modells der Universität Köln, verglichen. Jedes der Modelle lieferte seinen eigenen wichtigen Beitrag zur Flugplanung, und die Vorhersagen für die CO Tracer stimmten in der Regel gut überein, was auch in einer Studie zu den CONTRACE_1, MINOS und INDOEX Messkampagnen gezeigt wurde (Lawrence et al., 2003).

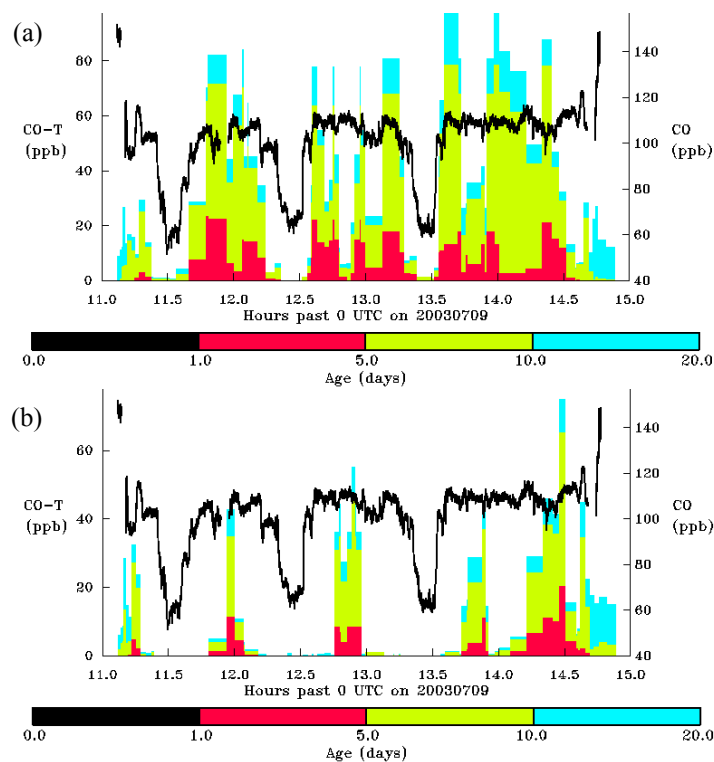


Abbildung 2: Altersspektren (farbige Säulen) der nordamerikanischen FLEXPART CO Tracer Vorhersagen (ppbv) entlang der Flugroute vom 9. Juli 2003 im Vergleich mit den CO Messdaten (schwarze Linien). Die Vorhersagen basieren auf NCEP GFS Daten in (a) und auf ECMWF Daten in (b).

Sowohl während CONTRACE_1 als auch während CONTRACE_2 waren die TUM Prognosen sehr erfolgreich. Es gelang, verschmutzte nordamerikanische Luftmassen, die über den Atlantik transportiert worden waren, über Europa vorherzusagen, und die DLR Falcon gezielt in diese Luftmassen zu schicken. Abbildung 1 zeigt ein Beispiel einer Vorhersage während der CONTRACE_1 Messkampagne. In der 9 Stunden Vorhersage vom 16 November 2001 ist ein CO Tracermaximum an der nordamerikanischen Ostküste zu erkennen. Es soll innerhalb von etwa 3-4 Tagen über den Nordatlantik nach Skandinavien transportiert werden. Die 66 Stunden Vorhersage zeigt ein Band mit erhöhten CO Tracerwerten über Südschweden, Norddeutschland und Teilen der

Nordsee. Basierend auf dieser Vorhersage wurde die DLR Falcon von Oberpfaffenhofen nach Oslo, von dort nach Stockholm und auf einer etwas weiter östlich liegenden Route wieder zurück nach Oberpfaffenhofen geschickt. Die verschmutzte Luftmasse konnte gefunden werden und wurde während des Fluges mehrmals durchflogen. Ergebnisse der Analysen dieses Fluges, die sehr gut mit den Messungen übereinstimmen, werden in den Abschnitten 2.2 und 2.3 präsentiert.

Für CONTRACE_2 war es erstmals möglich FLEXPART Vorhersagen sowohl mit NCEP GFS als auch mit ECMWF Windfelddaten zu erstellen. Erste Abschätzungen ergaben, dass die auf NCEP GFS Daten basierenden CO Tracervorhersagen eine etwas bessere Übereinstimmung mit den CO Messdaten zeigen als die auf ECMWF basierenden. Abbildung 2 zeigt als Beispiel die CO Messungen im Vergleich mit dem nordamerikanischen FLEXPART CO Tracer berechnet mit Hilfe der NCEP GFS (Abbildung 2a) und der ECMWF Daten (Abbildung 2b) für den Flug vom 9. Juli 2003. Bis auf drei CO Minima um 11:30, 12:30 und 13:30 UTC, als das Flugzeug in der unteren Stratosphäre flog, waren die CO Messungen während des gesamten Fluges erhöht (ca. 110 ppbv). Laut Vorhersage basierend auf NCEP GFS Daten sind die erhöhten CO Werte hauptsächlich auf nordamerikanische Luftmassen zurückzuführen. Der Pearson-Korrelationskoeffizient zwischen dem nordamerikanischen CO Tracer und den Messungen beträgt $r=0.45$ für Abbildung 2a. Die Vorhersage mit den ECMWF Daten erklärt nur Teile der erhöhten CO Werte, und die Korrelation beträgt nur $r=0.36$ für Abbildung 2b. Der europäische Tracer war bei beiden Vorhersagen nur zu Beginn und am Ende des Fluges erhöht und stimmte gut mit den CO Maxima zu Beginn und am Ende des Fluges überein. Eine Studie von Damoah et al. (2004) zeigte bei einem qualitativen Vergleich von Modellläufen mit NCEP GFS und ECMWF Daten, dass die Ergebnisse von beiden Datensätzen an unterschiedlichen Orten lokal von den Beobachtungen abweichen können, aber insgesamt eine sehr ähnliche Qualität der Ergebnisse liefern. Für einen quantitativen Vergleich von Simulationen mit NCEP und ECMWF Vorhersagen müssen jedoch noch weitere Untersuchungen und statistische Auswertungen durchgeführt werden.

Eine Validierung der TUM Vorhersageprodukte erfolgte in Kooperation mit dem AFO2000 Nachwuchsgruppenprojekt CARLOTTA im Rahmen des International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Programms bei der Intercontinental Transport and Chemical Transformation 2002 (ITCT 2k2) Flugzeugmesskampagne in Kalifornien im April/Mai 2002 (Forster et al., 2004, siehe Anhang). Ziel von ITCT 2k2 war es unter anderem, den Interkontinentaltransport verschmutzter Luftmassen von Asien nach Nordamerika zu quantifizieren. TUM stellte für die Flugplanung 3-Tages Vorhersagen eines asiatischen, eines nordamerikanischen und eines europäischen Tracers zur Verfügung. Wie bei CONTRACE waren die Vorhersagen sehr erfolgreich, und es gelang bei mehreren Messflügen, erheblich verschmutzte asiatische Luftmassen über der nordamerikanischen Westküste zu finden und zu vermessen. Weitere Details dazu sind in Forster et al. (2004) im Anhang dieses Berichts zu finden.

2.2. Analyse der Transportmechanismen und Berechnung von Tracer-Alterspektren verschiedener Tracer entlang der Flugrouten

Zur Analyse der Transportmechanismen und der Messdaten, die während CONTRACE_1 und CONTRACE_2 erfasst worden sind, wurden mit FLEXTRA vorwärts Trajektorien gerechnet und mit FLEXPART über den Kampagnenzeitraum Vorwärtssimulationen von anthropogenen CO und NO_x Tracern basierend auf dem EDGAR 1995 Emissionsinventar (Olivier and Berdowsky, 2001) und ECMWF Windfeldern durchgeführt (Stohl et al., 2003a, siehe Anhang). Um den Tracertransport zwischen Nordamerika und Europa möglichst genau zu erfassen, wurden zwischen 120°W-30°E und 18°N-66°N ECMWF Daten mit 0.5° Auflösung genestet. Die Tracer wurden entsprechend ihrer Herkunft (Europa, Nordamerika) markiert, und das Traceralter wurde in verschiedene Altersklassen unterteilt.

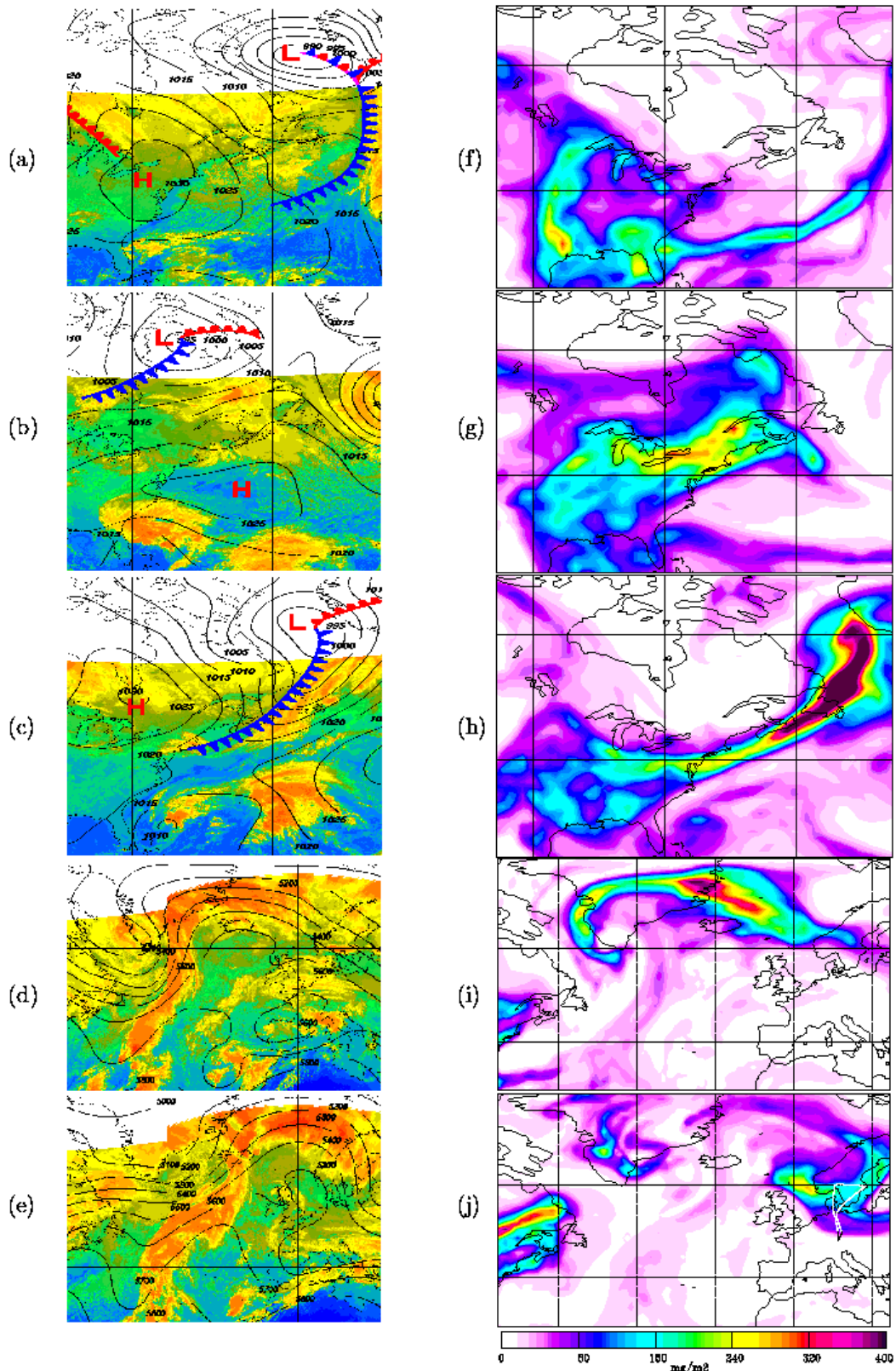


Abbildung 3: Links: Kombinierte GEOS-East/METEOSAT Infrarot-Satellitenbilder in Kombination mit Bodendruck Konturlinien aus NCEP GFS Analysen (schwarze Linien) und Bodenfronten am (a) 13. November 2001 um 0 UTC, (b) 15. November 0 UTC, (c) 17. November 0 UTC, (d) 18. November 12 UTC und (e) 19. November 12 UTC. Gelbe und rote Farben repräsentieren kalte Temperaturen (hochreichende Wolken), grüne und blaue Farben repräsentieren warme Temperaturen (flache Wolken) und die Erdoberfläche. Weisse Flächen sind Gebiete, in denen keine Daten verfügbar sind. Rechts: Gesamtsäule des nordamerikanischen FLEXPART CO Tracers zu den entsprechenden Zeiten der Satellitenbilder. Die Flugroute der Falcon ist in (j) dargestellt.

Während CONTRACE_1 wurden bei 4 von insgesamt 7 Flügen nordamerikanische Luftmassen über Europa mit dem TUM Prognosen vorhergesagt und mit der Falcon erfolgreich durchflogen (am 19. November 2001 zwei Flüge, am 22. und 27. November 2001 jeweils ein Flug). Die restlichen 3 Flüge untersuchten die Hebung europäischer Luftmassen in die mittlere und obere Troposphäre. Die Analysen ergaben, dass für den Transport von Nordamerika nach Europa hauptsächlich WCBs (Browning, 1990) verantwortlich waren. Auch während CONTRACE_2 gab es WCB Ereignisse, allerdings weitaus weniger häufig, was in Einklang mit der Studie von Eckhardt et al. (2004, siehe Anhang) steht, die herausgefunden hat, dass WCBs im Sommer weniger häufig vorkommen als im Winter (siehe Abschnitt 2.5). Bei insgesamt 9 Flügen während CONTRACE_2 gab es nur zwei WCB Ereignisse mit Schadstofftransport von der nordamerikanischen Grenzschicht nach Europa (am 9. und am 25. Juli), während die anderen Flüge den konvektiven Transport europäischer Spurengase in die obere Troposphäre untersuchten. Bei beiden WCB Ereignissen konnten die verschmutzten Luftmassen mit dem FLEXPART CO Tracer vorhergesagt und mit der DLR Falcon gefunden werden. Obwohl die Lage und der Zeitpunkt des Eintreffens der verschmutzten Luftmassen über Europa von den Modellprognosen und -analysen gut reproduziert wurden, waren die gemessenen CO Erhöhungen allerdings geringer als die simulierten. Vermutlich sind die Emissionsraten im EDGAR 1995 Emissionsinventar über Nordamerika zu hoch. Eine Studie von Parrish et al. (2002) zeigte nämlich, dass die Emissionen der USA zwischen 1987 und 1999 im Mittel um 7-9% pro Jahr zurückgingen. Somit wären die Emissionen der USA im Jahr 2003 durch das EDGAR 1995 Inventar um mehr als 50% überschätzt. Ausserdem zeigten die Messungen vor allem beim Flug am 25. Juli 2003 eine starke Variabilität, die in den FLEXPART Simulationen nicht erfasst wurden. Ein wahrscheinlicher Grund dafür ist, dass die Hebung der verschmutzten Luftmassen in den WCBs an der nordamerikanischen Ostküste meist mit starker Konvektion verbunden war, die im Modell nicht erfasst war, da die Simulationen aus Gründen, die in Abschnitt 4 erläutert werden, ohne Konvektionsparameterisierung gerechnet wurden.

Um den Transport in einem WCB zu veranschaulichen, ist in Abbildung 3 mit Hilfe von Satellitenbildern und der Gesamtsäule des nordamerikanischen CO Tracers dargestellt, wie es zum Transport der Schadstoffe von Nordamerika nach Europa kam, die während CONTRACE_1 am 19. November 2001 (gleicher Flug wie in Abbildung 1) mit der Falcon gemessen wurden. Eine grosse Antizyklone mit einem Kerndruck von etwa 1035 hPa lag zwischen dem 8. und 11. November 2001 über der nordamerikanischen Ostküste. Durch die absinkenden Luftbewegungen in der Antizyklone entstand eine Inversion, unter der sich Schadstoffe im Südosten der USA ansammeln konnten. Am 12. November wanderte die Zyklone in Richtung der Great Lakes und zog am 13. November weiter ostwärts (Abbildung 3a und 3f).

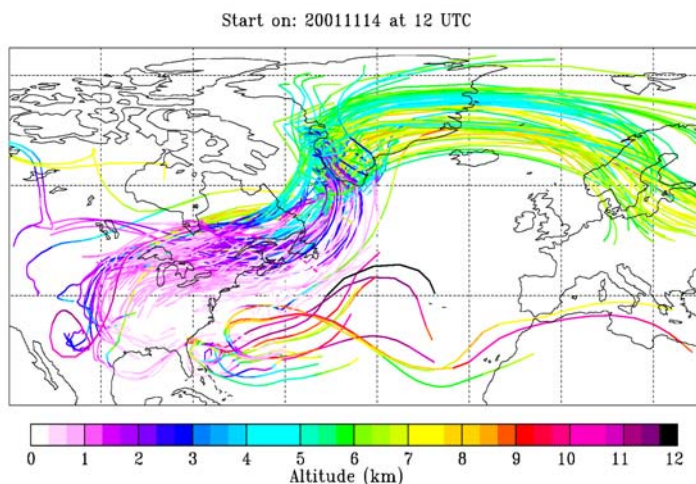


Abbildung 4: 5-Tage FLEXPART Vorwärtstrajektorien, die ein WCB Kriterium erfüllen (Aufstieg auf über 5km Höhe innerhalb von 4 Tagen und Endpunkt der Trajektorie nordöstlich des Startpunkts), gestartet alle 0.5° auf einer Höhe von 500m am 14. November 2001 um 12 UTC zwischen 20°-60°N und 110°-50°W.

Auf der Rückseite der Antizyklone konnte die verschmutzte Luft, die sich im Südosten angesammelt hatte, Richtung Norden zu den Great Lakes fließen (CO Tracer-Band zwischen dem Süden der USA und den Great Lakes). Dies geschah weitgehend unter wolkenfreien Bedingungen. Am 15. November zog die Antizyklone weiter Richtung Osten auf den Atlantik, während sich ein Tief über der Hudson Bay und Neufundland entwickelte (Abbildung 3b). Durch diese Konstellation wurde die Strömung zwischen Tief und Antizyklone kanalisiert, so dass die verschmutzte Luft sich Richtung Nordosten zur Küste zog und dort noch mehr Emissionen aufnahm (Abbildung 3g). Der Durchzug dieser Front an verschmutzten Luftmassen konnte an einem deutlichen Anstieg von Ozon an der Bergstation Horton in den Appalachen in der Nacht vom 14. auf den 15. November beobachtet werden (Huntrieser et al., 2004). Auch jetzt befand sich die verschmutzte Luftmasse immer noch in einem wolkenfreien Gebiet. Als sich die Zyklone intensivierte und am 17. November Richtung Osten über die Küste zog, drückte ihre Kaltfront die verschmutzten Luftmassen Richtung Atlantik, und ein WCB entstand. Durch die Hebung im WCB vor der Front wurden die Schadstoffe in die mittlere und obere Troposphäre transportiert und befanden sich schliesslich in dem mit dem WCB verbundenen Wolkenband (Abbildung 3c und 3h).

Zur Veranschaulichung des WCB wurden 5-Tage FLEXTRA vorwärts Trajektorien aus der nordamerikanischen Grenzschicht berechnet. Abbildung 4 zeigt nur die Trajektorien, die ein WCB Kriterium (siehe Abbildungsunterschrift) erfüllen. Sie bewegen sich zunächst in niedrigen Höhen im Bereich der nordamerikanischen Ostküste, bevor sie im WCB auf etwa 6-8 km gehoben wurden und die für einen WCB typische kohärente Strömung über den Atlantik nach Europa zeigen. Der WCB ist auch sehr schön in Abbildung 3d zu erkennen. Das mit dem WCB verbundenen Wolkenband erstreckt sich über und südlich von Grönland. Obwohl das Satellitenbild eine Momentaufnahme ist, während die Trajektorien einen 5-Tageszeitraum abdecken, stimmt die Lage des Wolkenbandes sehr gut mit der Lage der Trajektorien überein.

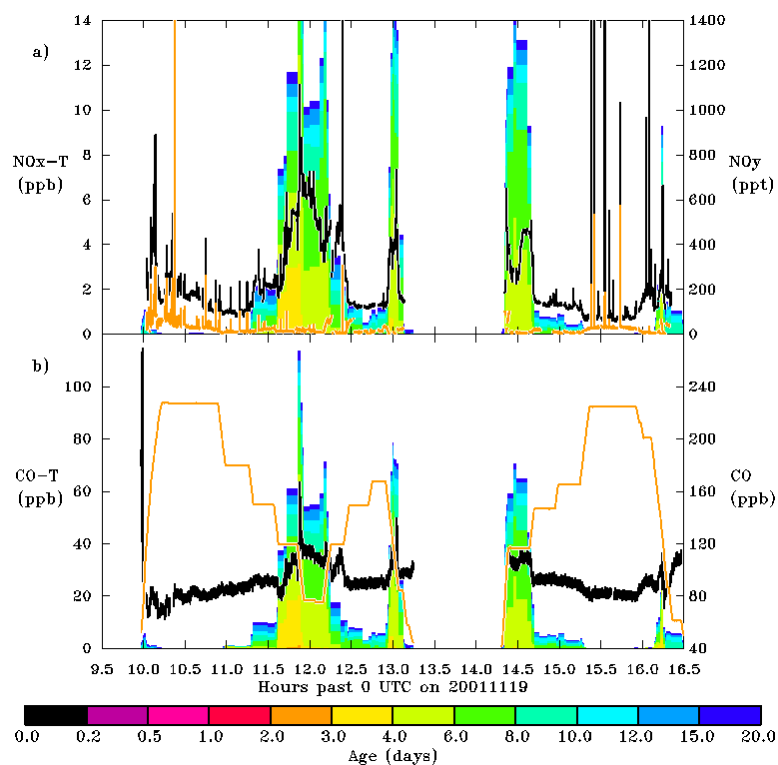


Abbildung 5: Altersspektren (farbige Säulen) des nordamerikanischen FLEXPART (a) NO_x und (b) CO Tracers entlang der Flugroute vom 19. November 2001 in Kombination mit Flugzeugmessungen von (a) NO (orange Linie), NO_y (schwarze Linie) und (b) CO (schwarze Linie). Die orange Linie in (b) ist die Flughöhe in km in 10% der Einheit der CO-T Achse.

Ein Vergleich des Satellitenbildes in Abbildung 3d mit dem CO Tracer in Abbildung 3i am 18. November zeigt, dass sich das Tracermaximum im nördlichen Teil des WCB befindet. Der südliche Teil (südlich von Grönland) weist nur geringe Tracerkonzentrationen auf. Dies ist darauf zurückzuführen, dass der nördliche Teil die Luftmassen enthält, in denen sich Schadstoffe unter dem Hochdruckeinfluss an der nordamerikanischen Ostküste

einige Tage zuvor ansammeln konnten. Mit dem Durchzug des Tiefs am 16./17. November wurde die Inversion des Hochs aufgelöst. Die Emissionen, die dann freigesetzt wurden und in den südlichen Teil des WCBs gerieten, hatten weniger Zeit sich anzusammeln und wiesen daher niedrigere Konzentrationen auf. Einen Tag später erreichte das Maximum der verschmutzten Luftmasse Europa (Abbildung 3j). Zu dieser Zeit befand sich das Maximum bereits im Ausfluss des WCB vor der Wolkenfront (Abbildung 3e).

Die mit der Falcon erhobenen Messdaten wurden mit den an die Flugrouten interpolierten FLEXPART CO und NO_x Tracern verglichen. Während des Fluges am 19. November 2001 wurde die verschmutzte Luftmasse aus Nordamerika, die sich über Skandinavien in einer Höhe von etwa 4 km befand, insgesamt vier Mal mit der Falcon durchflogen (Abbildung 5). Sowohl der nordamerikanische NO_x als auch der nordamerikanische CO Tracer weisen während des Fluges vier Maxima um 12, 13, 14:30 und 16:15 UTC mit einem Traceralter zwischen 4 und 6 Tagen auf. Während all dieser Zeiten zeigen auch die NO_y und CO Messungen klare Erhöhungen über dem Hintergrund, d.h. die zeitliche und räumliche Lage der Tracermaxima stimmen gut mit den Erhöhungen in den Messungen überein, aber sie werden vom Modell etwas überschätzt. Die NO Messungen sind während des gesamten Fluges sehr niedrig. Offensichtlich ist das meiste NO der verschmutzten Luftmasse chemisch bereits zu einer Spezies der NO_y Familie umgewandelt worden. Es handelt sich also um eine Luftmasse, die mehrere Tage alt ist, eine Zeitskala, die das Traceralter in FLEXPART auch bestätigt. Die NO_y Messungen sind um etwa eine Größenordnung niedriger als der NO_x Tracer, was darauf hindeutet, dass 90% des NO_y während des Transports durch Prozesse wie Auswaschung entfernt wurden. Huntrieser et al. (2004) erhielten für diesen Flug durch die Korrelation der NO_y und CO Messungen ein sehr ähnliches Ergebnis.

2.3. Rückwärtsmodellierung von Interkontinentaltransport mit Hilfe von Flugzeugmessdaten

Um eine detaillierte Quellenanalyse der während der Flüge gemessenen Schadstoffe zu erhalten, wurde mit Hilfe von FLEXPART ein neues Verfahren der Rückwärtsmodellierung entwickelt (Stohl et al., 2003a, siehe Anhang).

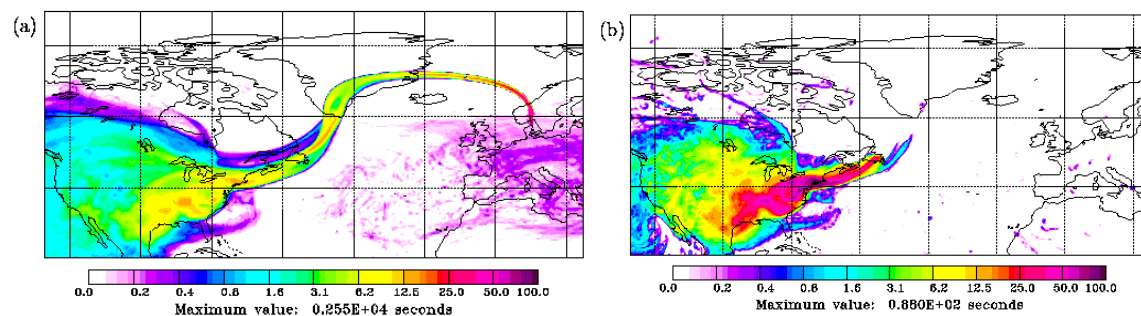


Abbildung 6: Aufenthaltszeiten (a) in der gesamten atmosphärischen Säule und (b) in der footprint Schicht für Partikel, die in der Rezeptorbox (0.005° x 0.035° x 200m) am 19. November 2001 um 11:53 UTC ankommen. Die Zeiten sind in Prozent der maximalen Aufenthaltszeit unterhalb der Bilder angegeben. Die Partikel wurden über einen Zeitraum von 20 Tagen zurückverfolgt

Entlang der Flugrouten werden kleine (Rezeptor)boxen im horizontalen Abstand von 0.2° oder bei einem Anstieg des Flugzeugs um mehr als 200m erzeugt. Von jeder dieser Boxen werden 20000 Partikel mit einem Einheitsmischungsverhältnis freigesetzt und rückwärts mit der Zeit verfolgt. Zu definierten Zeiten (hier alle 24 Stunden) werden die Aufenthaltszeiten dieser Partikel normiert mit der Gesamtzahl aller freigesetzten Partikel auf einem einheitlichen Gitter (hier 0.5x0.5°) bestimmt. Multipliziert man unter der Annahme, dass anthropogene Emissionen nur in der Grenzschicht aufgenommen werden, die Aufenthaltszeiten in der 300m dicken untersten Modellschicht (footprint) mit den Quellstärken aus dem EDGAR 1995 Emissionsinventar (Olivier and Berdowsky, 2001), so erhält man pro Gitterzelle den Beitrag zum Mischungsverhältnis an der

Rezeptorbox. Die Summe all dieser Beiträge ergibt schließlich das Mischungsverhältnis an der Rezeptorbox. Die Rückwärtssimulationen können als Ersatz für konventionelle Rückwärtstrajektorien betrachtet werden (Stohl et al., 2002a), da sie im Gegensatz zu einfachen Trajektorien Turbulenz und Konvektion berücksichtigen.

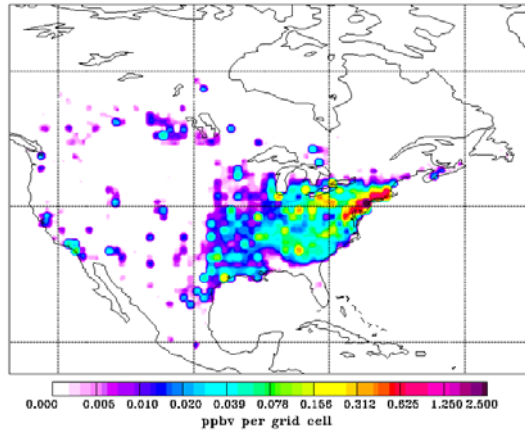


Abbildung 7: CO Beiträge (ppbv) pro 0.5° x 0.5° Gitterzelle zum CO Maximum in der Rezeptorbox von Abbildung 6, basierend auf dem EDGAR 1995 Emissionsinventar.

Als Beispiel dient wieder der Flug vom 19. November 2001. In Abbildung 6 sind für das CO Maximum um 11:53 UTC dieses Fluges die Aufenthaltszeiten in der gesamten atmosphärischen Säule und in der footprint Schicht nach einer Rückwärtssimulation von 20 Tagen dargestellt. Die Aufenthaltszeiten für die atmosphärische Säule zeigen den kohärenten Transport im WCB über den Atlantik und das für einen WCB typische weite Einzugsgebiet über Nordamerika. Die Aufenthaltszeiten in der footprint Schicht, wo anthropogene Emissionen hauptsächlich aufgenommen werden, haben ihr Maximum deutlich im Bereich der nordamerikanischen Ostküste, eine Region mit sehr hohen Schadstoffemissionen. Die Beiträge pro Gitterzelle zum CO Maximum um 11:53 UTC in Abbildung 7 deuten darauf hin, dass hauptsächlich Emissionen in der Region in und um New York für das gemessene CO Maximum verantwortlich waren.

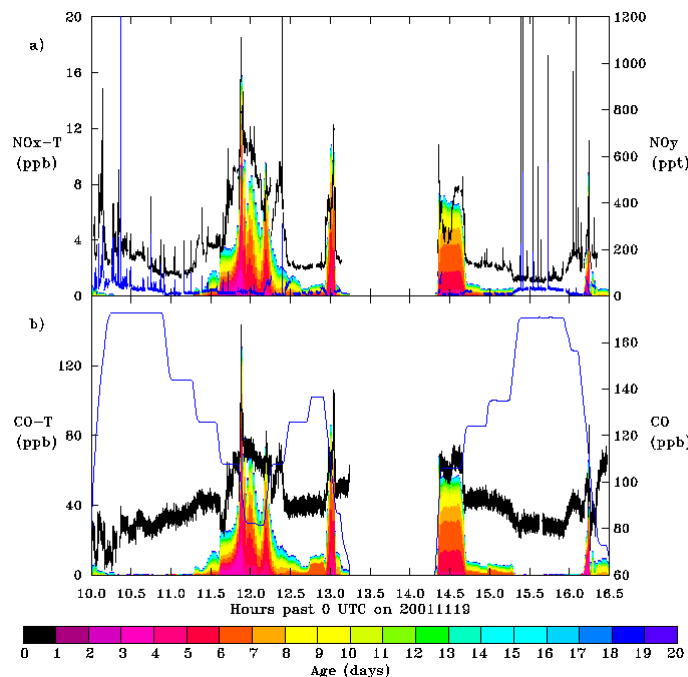


Abbildung 8: Altersspektren (farbige Säulen) des nordamerikanischen FLEXPART (a) NO_x und (b) CO Tracers entlang der Flugroute vom 19. November 2001 basierend auf Rückwärtssimulationen. Die Linien repräsentieren Flugzeugmessungen von (a) NO (blaue Linie), NO_y (schwarze Linie) und (b) CO (schwarze Linie). Die blaue Linie in (b) ist die Flughöhe in km in 10% der Einheit der CO-T Achse.

Die Summe aller CO Beiträge in Abbildung 7 ergibt das CO Mischungsverhältnis in der Rezeptorbox. Wendet man diese Methode für alle Rezeptorboxen entlang der Flugroute an, so erhält man die CO und NO_x Tracer entlang der Flugroute (Abbildung 8). Man kann nun sehr viele fein-skalige Strukturen erkennen, die bei der Vorwärtssimulation aufgrund

der Interpolation an die Flugroute fehlen (vergleiche Abbildung 5). Ausserdem stimmt der CO Tracer quantitativ besser mit den Messdaten überein. Lediglich an den Flanken der CO Maxima um 12 UTC und um 16 UTC unterschätzt der Modelltracer die gemessenen CO Erhöhungen. Da große Waldgebiete in Tennessee, South Carolina und Georgia Anfang November 2001 brannten, liegt die Vermutung nahe, dass ein Teil der CO Erhöhungen, die nicht durch anthropogene Emissionen erklärt werden können, durch Waldbrandemissionen verursacht waren. Basierend auf Daten vom National Interagency Fire Center (NIFC, 2002) wurde ein Emissionsinventar für diese Waldbrände erstellt und mit den Aufenthaltszeiten der Partikel aus den Rückwärtssimulationen kombiniert. Tatsächlich konnten die CO Erhöhungen an den Flanken der CO Maxima um 12 UTC und 16 UTC zu einem großen Teil durch die Waldbrandemissionen erklärt werden.

2.4. Schneller Interkontinentaltransport in Verbindung mit einer meteorologischen Bombe

2.4.1 Fallstudie im November 2001

Normalerweise findet ICT von Spurengasen auf einer Zeitskala von mehreren Tagen bis Wochen statt. Anfang November 2001 gab es jedoch eine außergewöhnliche Episode, während der Schadstoffe innerhalb von nur einem Tag von Nordamerika über den Atlantik nach Europa transportiert wurde (Stohl et al., 2003b, siehe Anhang). Der schnelle Transport fand über dem Nordatlantik in Verbindung mit einer sogenannten meteorologischen Bombe statt, einer sich sehr rasch intensivierenden Zyklone. Die Zyklone hatte einen Kerndruckabfall von 34 hPa pro 30 Stunden, der das Kriterium für die allgemeine Definition einer meteorologischen Bombe (21 hPa in 24 Stunden bei 50°N) deutlich übertraf. Nach unserem Wissen ist dies die erste Studie, die den Schadstofftransport in einer meteorologischen Bombe untersucht. Sie wurde in enger Kooperation mit den AFO2000 Projekten NOXTRAM und ATMOfAST durchgeführt.

Die Bombe befand sich am 7. November über Neufundland, bewegte sich am 8. November nordostwärts Richtung Grönland und zog dann vom 9. bis 10. November rasch über Grönland und den Nordatlantik Richtung Nordeuropa. Südlich des Zentrums der Bombe bildete sich durch die starken Druckgradienten eine starke zonale Strömung aus, ein sogenannter "Atmosphärischer Highway", der den schnellen Transport von Nordamerika nach Europa ermöglichte. Das Transportereignis, das sich vom 9. auf den 10. November 2001 ereignete, wurde mit Hilfe von Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) (Burrows et al., 1999) Satellitenmessungen von NO₂ und FLEXPART NO_x Transportsimulationen entdeckt. Leider gibt es zu diesem Ereignis keine Flugzeug-Messungen der Falcon, da die CONTRACE_1 Messkampagne erst am 14. November begann.

Abbildung 9 zeigt den nordamerikanischen FLEXPART NO_x Tracer für den Zeitraum 7.-11. November in Kombination mit den NO₂ Säulen an den entsprechenden Tagen, und Abbildung 10 zeigt eine Auswahl verschiedener Nord-Süd Vertikalschnitte durch die FLEXPART Ergebnisse für diesen Zeitraum. Am 7. November, als die Bombe über Neufundland lag, zeigen die FLEXPART Ergebnisse keinen nennenswerten Schadstofftransport vom nordamerikanischen Kontinent Richtung Atlantik (Abbildung 9a links). Der Tracer über dem Kontinent befindet sich hauptsächlich in der unteren Troposphäre (Abbildung 10a), da er durch die Inversion eines Hochdruckgebietes am Aufsteigen gehindert wird. Insgesamt stimmen die GOME NO₂ Säulen sehr gut mit den FLEXPART Resultaten überein (Abbildung 9a rechts). Eine Ausnahme ist Europa, wo das Modell keine NO_x Erhöhungen zeigt, da in Abbildung 9 nur der nordamerikanische Tracer dargestellt ist. Am 8. November nähert sich dem Hochdruckgebiet von Westen her ein Tief, in dessen WCB die Schadstoffe nordöstlich der Great Lakes gehoben werden (Abbildung 10b). GOME zeigt zu dieser Zeit etwas NO₂ Transport Richtung Atlantik (Abbildung 9b rechts). Am 9. November verlässt ein NO_x Tracer-Filament Nordamerika Richtung Osten (Abbildung 9c links). Der WCB hatte den NO_x Tracer in den Atmosphärischen Highway gehoben, in dem der Tracer anschließend innerhalb von etwa

einem Tag nach Europa transportiert wurde (Abbildung 9d und 9e links). Auch in den GOME Bildern ist ein NO₂ Filament zu erkennen (Abbildung 9c bis 9e rechts), dessen Lage mit der des NO_x Tracer-Filaments gut übereinstimmt.

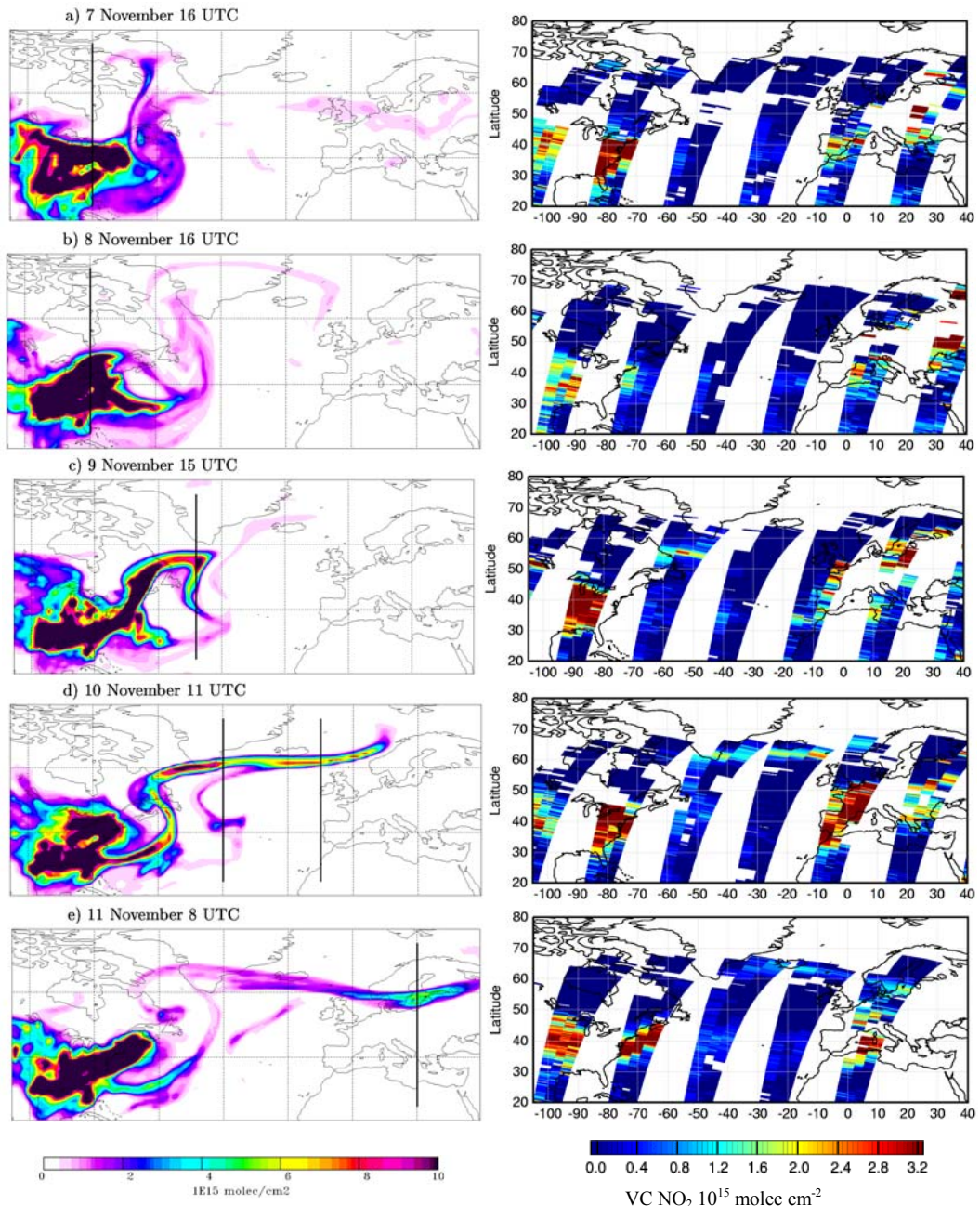


Abbildung 9: Links: Gesamtsäule des FLEXPART NO_x Tracers. Die Säulen sind 1-Stundenmittel, deren Endzeit oberhalb jeder Abbildung gegeben ist. Die schwarzen vertikalen Linien markieren die Lage der Querschnitte von Abbildung 10. Rechts: Troposphärische GOME NO₂ Säulen an den entsprechenden Tagen. Weiße Regionen markieren Gebiete, in denen keine Daten zur Verfügung stehen oder Gebiete mit mehr als 50% Wolkenbedeckung.

Die Vertikalschnitte (Abbildung 10) zeigen, dass das Filament durch den WCB auf etwa 6 km gehoben worden war und anschließend im Highway auf 2-4 km Höhe absank. Das Absinken förderte die Auflösung der Wolken, weshalb das NO₂ Filament mit GOME, der in wolkenreichen Gebieten nur unzuverlässige Messungen liefert, so gut beobachtet werden konnte.

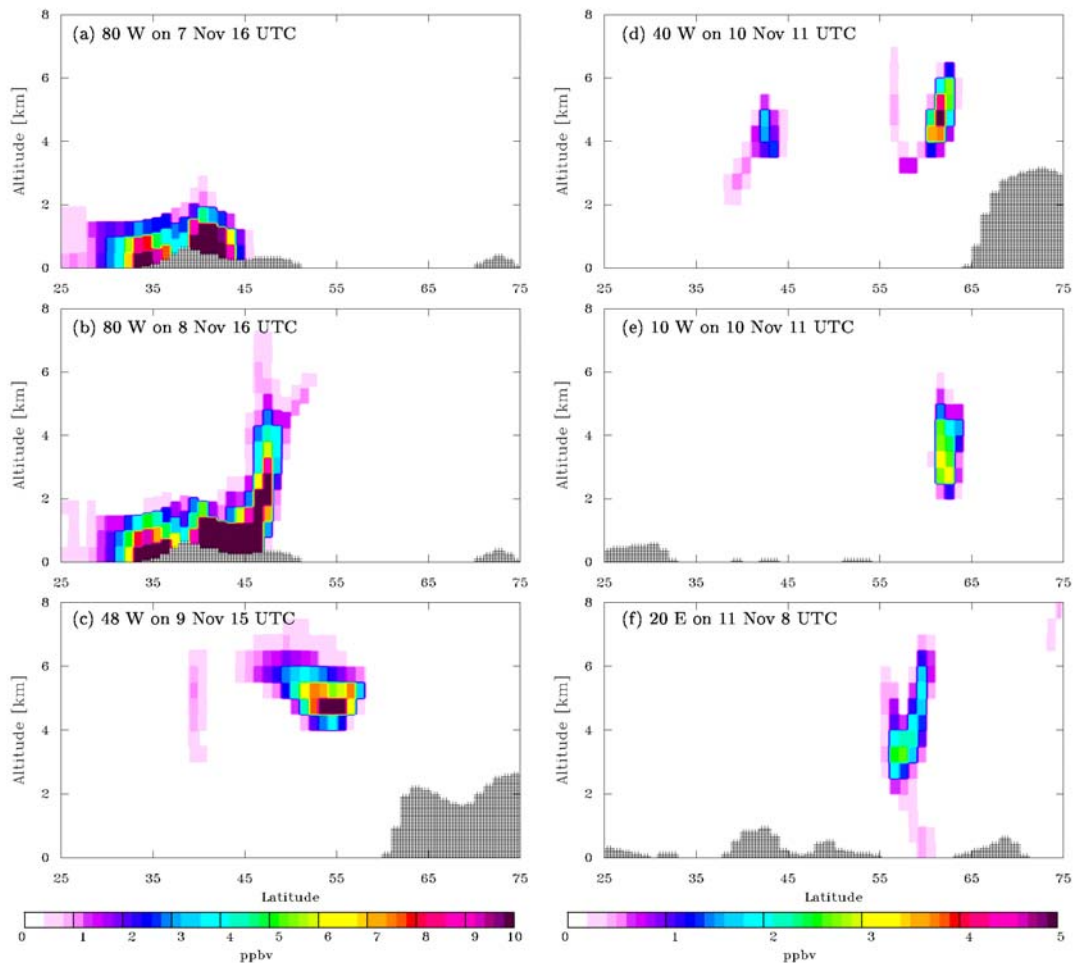


Abbildung 10: Nord-Süd Vertikalschnitte durch den FLEXPART NO_x Tracer entlang der schwarzen Linien von Abbildung 9. Schraffierte Flächen markieren die Topographie.

2.4.2 Blitztracersimulationen

Oft ist es schwierig NO_x , das in der mittleren und oberen Troposphäre gemessen wurde, eindeutig anthropogenen Quellen zuzuordnen, denn die Hebung von anthropogenen Schadstoffen in WCBs ist meist mit Blitzen verbunden, die ihrerseits zusätzliche Mengen an NO_x produzieren können (e.g. Jeker et al., 2000).

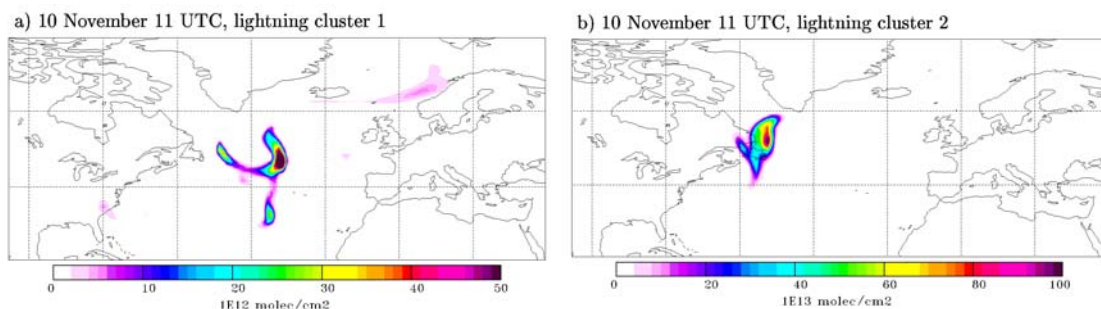


Abbildung 11: Gesamtsäulen des FLEXPART Blitz- NO_x -Tracers am 10. November 2001 um 11 UTC (gleiche Zeit wie die GOME Beobachtungen in Abbildung 9d rechts) für (a) das Blitz Cluster 1 und das (b) Blitz Cluster 2. Die unterschiedlichen Skalen in den beiden Abbildungen sind zu beachten.

Mit Hilfe von Blitzdaten des Canadian Lightning Detection Networks (CLDN) und des U.S. National Lightning Detection Network (NLDN) (Cummins et al., 1998) wurden für die Fallstudie von Abschnitt 2.4.1 zwei Episoden festgestellt, in denen es zwischen dem 7. und 9. November über Nordamerika (Cluster 1) und an nordamerikanischen Küste (Cluster 2) Blizttätigkeit gab. Um auszuschließen, dass es sich bei den GOME Messungen um NO_2 aus Blitzen handelt, wurden mit FLEXPART Blitz-Tracer-

Rechnungen durchgeführt. Die Blitz-NO_x Emissionen für die beiden Episoden wurden dabei mit Hilfe der CLDN und der NLDN Daten in Kombination mit typischen NO_x Emissionswerten durch Blitze abgeschätzt.

Abbildung 11 zeigt die Gesamtsäulen des Blitztracers für die beiden Episoden zur Zeit der GOME Beobachtungen am 10. November. Tatsächlich wurde ein Teil des NO_x aus einer der Episoden im Atmosphärischen Highway transportiert und ist etwa an der Stelle zu sehen, wo GOME das NO₂ Filament beobachtet hat (Abbildung 11a). Allerdings sind die Maxima der Konzentrationen des Blitztracers um mehr als zwei Größenordnungen geringer als die beobachteten. Auch die NO_x Konzentrationen über dem Nordatlantik sind noch zu niedrig, um von GOME erfasst zu werden. Die NO_x Maxima der zweiten Blitzepisode zeigen dagegen wesentlich höhere Konzentrationen. Allerdings befanden sie sich am 10. November immer noch nahe an der nordamerikanischen Küste, wo sie produziert worden waren (Abbildung 11b), und im Atmosphärischen Highway ist kein Blitztracer zu erkennen. Die NO_x Emissionen der Blitze aus den beiden Blitzepisoden können also das von GOME beobachtete NO₂ Filament im Atmosphärischen Highway nicht erklären und bestätigen damit dessen anthropogene Herkunft. Auch Sensitivitätsstudien, bei denen die Blitzemissionen um 5° ostwärts und südwärts verschoben wurden, um Fehler durch eventuell fehlende Blitzdaten abzudecken, führten zu sehr ähnlichen Ergebnissen.

2.4.3 Klimatologie des Transports in Atmosphärischen Highways

Da die Fallstudie in Abschnitt 2.4.1 erstmals schnellen interkontinentalen NO_x Transport auf einer Zeitskala von etwa einem Tag beschreibt, stellt sich nun die Frage, ob es sich dabei um ein einzelnes, extremes Ereignis handelt, oder ob solche Ereignisse öfter vorkommen. Um diese Frage zu beantworten, wurde die von Eckhardt et al. (2003) durchgeführte 15-Jahres Klimatologie des Transports und der Zeitskalen des Interkontinentaltransports verwendet. Sie ist eine Erweiterung der 1-Jahresklimatologie von Stohl et al. (2002b) und basiert auf globalen FLEXPART Simulationen von 6 passiven CO Tracern, die nach ihrer Herkunft von den verschiedenen Kontinenten markiert sind. Die Tracerpartikel wurden gemäß der Emissionsverteilung von CO kontinuierlich während der 15 Jahre freigesetzt. Um die entsprechenden NO_x Emissionen zu erhalten wurden typische Emissionsverhältnisse von NO_x zu CO angenommen (z.B. für USA NO_x/CO = 0.16). Die Modellresultate wurden in verschiedene Altersklassen eingeteilt, um schnellen (wenige Tage) und langsamen (mehrere Wochen) Transport voneinander unterscheiden zu können. Als schneller Transport in Atmosphärischen Highways wurde definiert, wenn nordamerikanischer Tracer in weniger als 4 Tagen Europa erreicht. Für asiatischen Tracer über Nordamerika wurden 6 Tage als Limit verwendet, da der Pazifik wesentlich größer ist als der Atlantik.

In guter Übereinstimmung mit Klimatologien von meteorologischen Bomben zeigte die 15-Jahresklimatologie, dass schneller Transport in Atmosphärischen Highways im Winter etwa vier mal so oft wie im Sommer auftritt, da meteorologische Bomben und Atmosphärische Highways im Winter häufiger sind als im Sommer. Für langlebige Substanzen wie CO haben Atmosphärische Highways keinen signifikanten Einfluss auf den ICT dieser Substanzen. Für kurzlebige Spurengase wie NO₂, dominieren jedoch die schnellen Transportereignisse. Atmosphärische Highways tragen damit zu 66% zum gesamten ICT im Winter und zu 44% zum gesamten ICT im Sommer bei. Aufgrund des Vorkommens von Atmosphärischen Highways kommt im Winter also doppelt so viel kurzlebiger nordamerikanischer Tracer über Europa an. Eine grobe Abschätzung ergibt, dass dadurch das klimatologische Mittel des NO_x Mischungsverhältnisses über Europa im Winter um etwa 2-3ppt erhöht ist, eine Menge, die ausreicht, um die Photochemie von O₃ (O₃ Produktion oder Zerstörung) signifikant zu beeinflussen.

2.5. Eine 15-Jahresklimatologie von WCBs

Trajektorien beschreiben die Bahnen von Luftpaketen und eignen sich daher besonders gut zur Klassifikation von Luftströmen (Wernli und Davies, 1997). Die Studie von Stohl

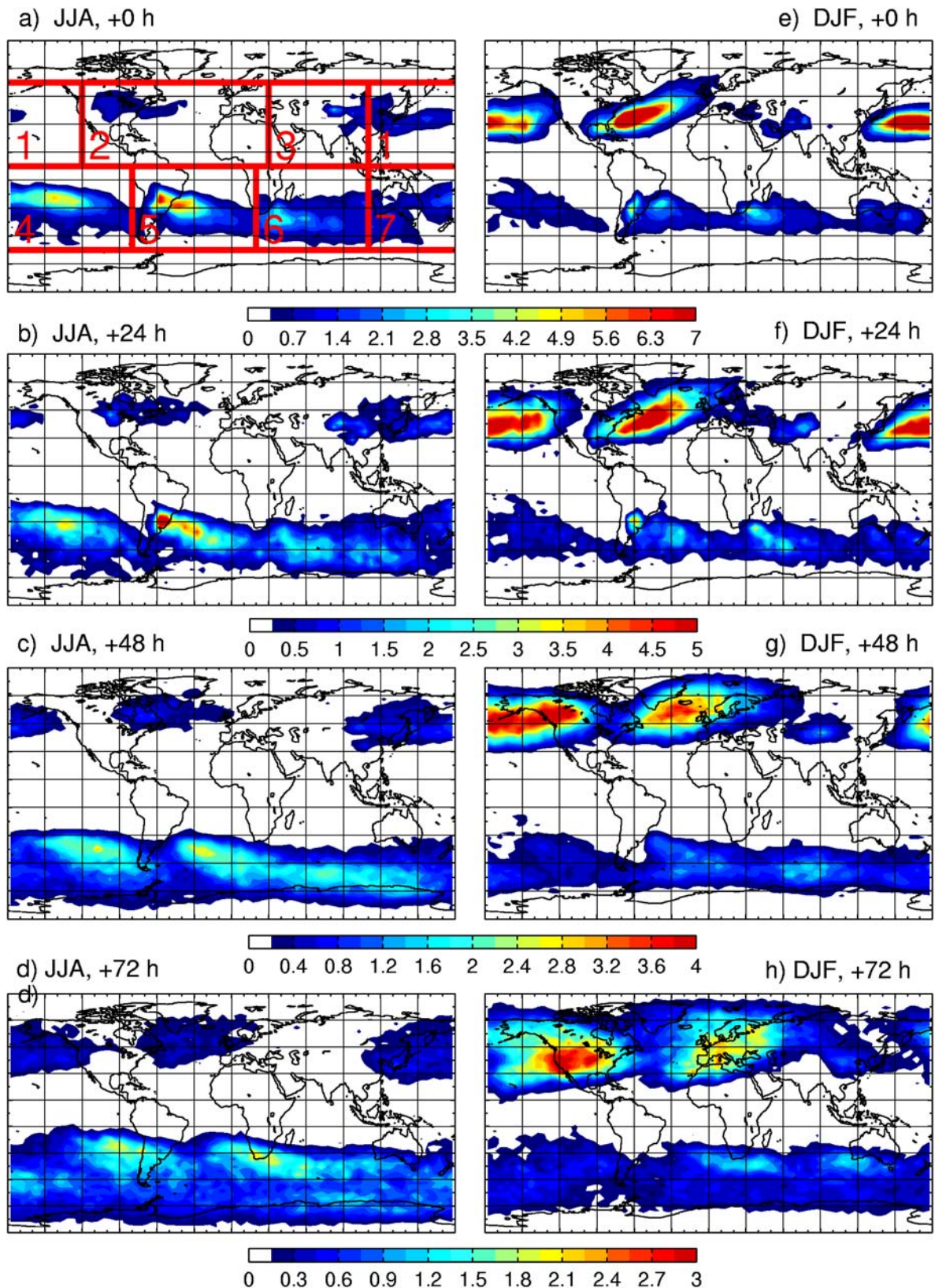


Abbildung 12: Mittlere saisonale und räumliche Verteilung der WCB Startpunkte (a,e) und der WCB Trajektorienpositionen nach 24 (b,f), 48 (c,g) und 72 (d,h) Stunden für Juni-Juli-August (JJA, linke Spalte) und Dezember-Januar-Februar (DJF, rechte Spalte) über 15 Jahre. Dargestellt ist der Anteil aller Trajektorien (in %), die die WCB Kriterien erfüllen. Die roten, von 1 bis 7 nummerierten Regionen in (a) sind Gegenstand weiterer Untersuchungen.

und Trickl (1999) über den weitreichenden Transport von O_3 war die erste, die mit Hilfe von Trajektorien und Messungen nachweisen konnte, dass photochemisch gebildetes O_3 von der nordamerikanischen Grenzschicht in die mittlere Troposphäre gehoben und über den Atlantik bis nach Europa transportiert werden kann. Diese Studie und die Trajektorienrechnungen der 1-Jahresklimatologie von Stohl (2001) zeigten erstmals, dass WCBs in den Extratropen der wichtigste Mechanismus für ICT von verschmutzten Luftmassen sind.

In enger Kooperation mit dem Nachwuchsgruppenprojekt CARLOTTA erweiterten Eckhardt et al. (2004, siehe Anhang) die 1-Jahresklimatologie von Stohl (2001) auf eine 15-Jahresperiode und untersuchten verschiedene Eigenschaften von WCBs, wie deren globale Verteilung, deren Häufigkeit und deren Variabilität. Dazu wurden mit dem FLEXTRA Modell auf einem globalen $1^\circ \times 1^\circ$ Gitter über 15 Jahre alle 6 Stunden 3-dimensionale Trajektorien in 500m Höhe (also in der planetaren Grenzschicht, wo WCBs entstehen) gestartet und 6 Tage simuliert. Die Simulationen basierten auf den ECMWF 15-Jahre Reanalyse Daten (ERA-15) (Gibson et al., 1999), die den Zeitraum von 1979 bis 1993 abdecken. Alle 24 Stunden wurden die Trajektorienpositionen, die potentielle Vorticity, die potentielle Temperatur, die spezifischen Feuchte und der Druck abgespeichert. Als WCBs wurden diejenigen Trajektorien definiert, die rasch innerhalb von 2 Tagen auf über 60% der zonal und klimatologisch gemittelten Tropopausenhöhe ansteigen und sich in dieser Zeit mindestens 5° nordwärts und 10° polwärts bewegen.

Nach Anwendung des Auswahlkriteriums zur Identifizierung der WCBs auf alle errechneten Trajektorien ergibt sich die globale Verteilung der Startpunkte von WCBs und deren Positionen nach 24, 48 und 72 Stunden (Abbildung 12). Die Angaben der Häufigkeit erfolgen in Prozent der Gesamttrajektorien an dieser Stelle. Sowohl im Sommer als auch im Winter starten die meisten WCBs zwischen $25^\circ N$ und $45^\circ N$ und zwischen $20^\circ S$ und $45^\circ S$. Sie sind im Winter wesentlich häufiger als im Sommer, wobei die Unterschiede in der Nordhemisphäre (NH) deutlich stärker ausgeprägt sind als in der Südhemisphäre (SH). In der NH kommen WCBs im Winter etwa 10 mal so häufig vor wie im Sommer. Zwei ausgeprägte WCB Maxima sind nahe der nordamerikanischen und asiatischen Ostküste zu finden, beides Gebiete mit hohen Schadstoffemissionen. Über Europa und dem westlichen Nordamerika sind WCBs dagegen sehr viel seltener. In der SH überwiegen die Ozeane, daher zeigen die WCBs eine gleichmäßigere zonale Verteilung, und die Startpunkte der WCBs sind etwa um 5° näher am Äquator angesiedelt.

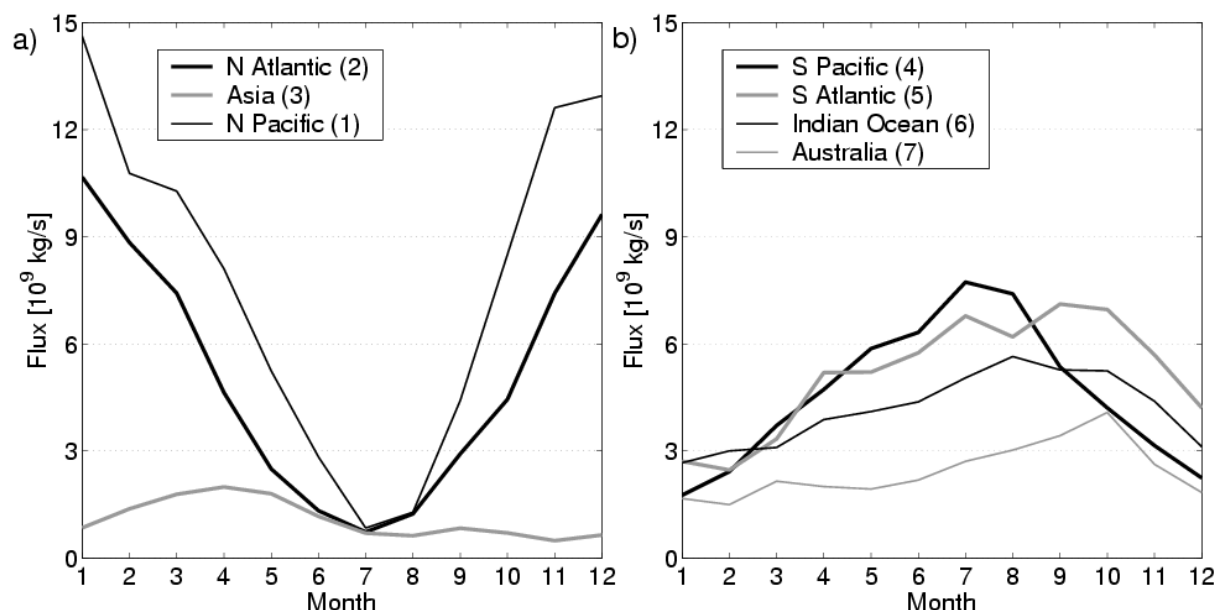


Abbildung 13: Jährliche Variation der monatlichen WCB Massenflüsse (10^9 kg s^{-1}) für die sieben Boxen, die in Abbildung 12a markiert sind. In (a) sind die Flüsse in den Boxen der Nordhemisphäre, in (b) die der Südhemisphäre dargestellt.

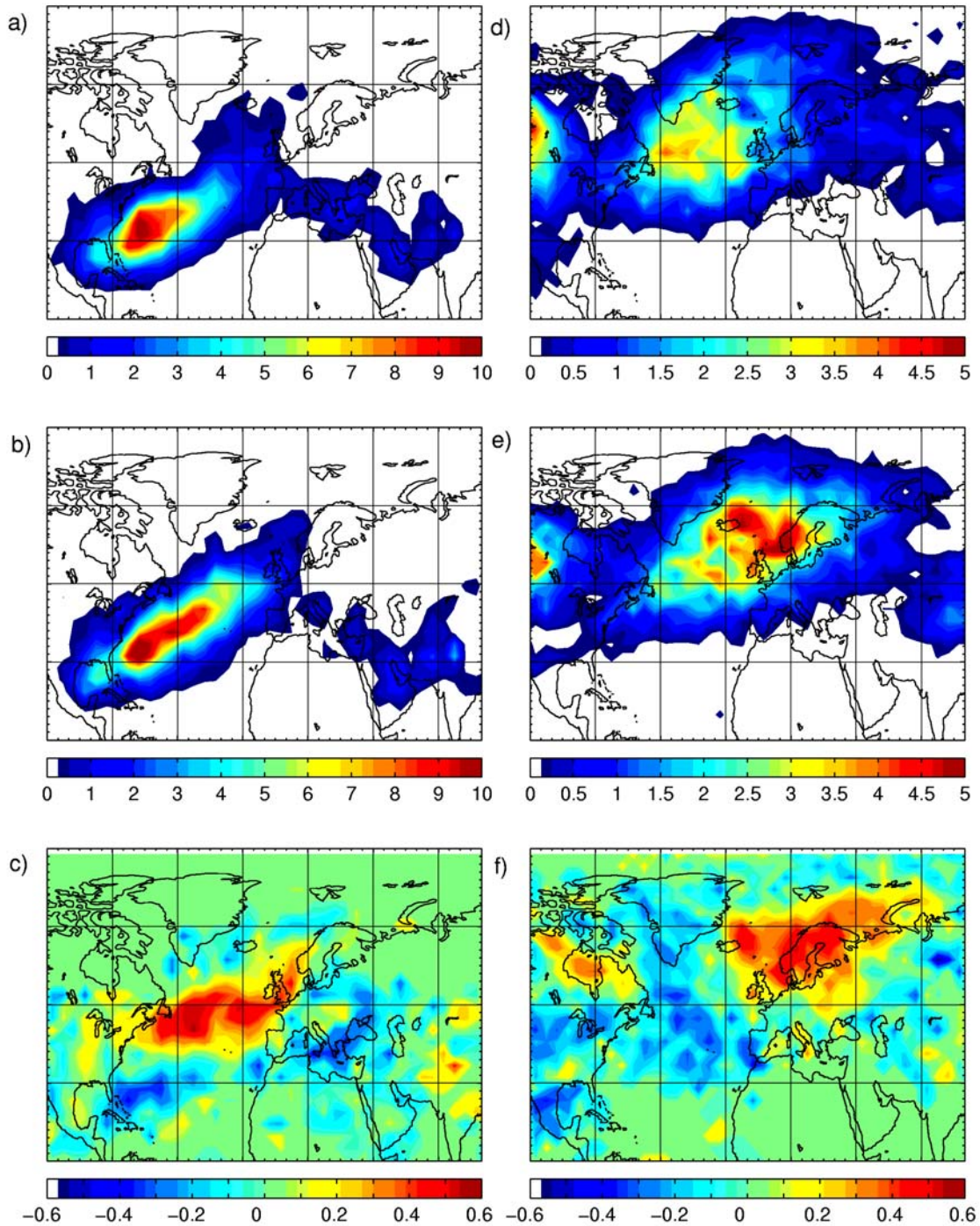


Abbildung 14: Räumliche Verteilung der Häufigkeit (in % aller Trajektorien) von WCB Startpunkten (a,b) und den WCB Trajektorienpositionen nach 48 Stunden (d,e) im Winter bei niedrigem (a,d) und hohem (b,e) NAO Index. (c,f) zeigen eine Korrelationsanalyse zwischen dem NAO Index und den WCB Startpunkten (c) bzw. den WCB Trajektorienpositionen nach 48 Stunden (f) für alle Wintermonate der 15 Jahresperiode zwischen 1979 und 1994. Korrelationskoeffizienten größer (kleiner) 0.29 (-0.29) sind statistisch signifikant.

Während der ersten 2 Tage ziehen die WCBs polwärts und ostwärts (Abbildungen 12 b, c, f, g), kommen dann in eine antizyklonale Strömung und bewegen sich äquatorwärts (Abbildungen 12 d, h). Der Transport ist am schnellsten während der ersten zwei Tage, wenn die WCB Trajektorien sich nahe am Jetstream in der oberen Troposphäre befinden. In beiden Hemisphären fällt auf, dass die ostwärts Bewegung der WCBs im Winter stärker ausgeprägt ist als im Sommer. Ausserdem sind die Startpunkte der WCBs wesentlich mehr auf bestimmte Regionen fokussiert als die Endpunkte nach zum Beispiel 2 Tagen. Die meisten WCBs kommen nach 4 Tagen im Winter und nach 6 Tagen im

Sommer über dem nächsten ostwärts gelegenen Kontinent an, d.h. ICT findet auf Zeitskalen von nur wenigen Tagen statt, was zum Beispiel während der CONTRACE Messkampagnen durch Tracertransportsimulationen und Messungen bestätigt wurde.

Das Einzugsgebiet eines WCB liegt in der untersten Troposphäre. Unter der Annahme, dass die für die 15-Jahresklimatologie gerechneten Trajektorien, die in 500m Höhe starten, dieses Einzugsgebiet repräsentieren, und dass die Höhe dieses Einzugsgebietes zwischen 0 und 1000m liegt, kann der in einem WCB transportierte Massenfluss berechnet werden. Abbildung 13 zeigt die saisonale Variation der WCB Massenflüsse für die sieben Boxen aus Abbildung 12a gemittelt über 15 Jahre. In beiden Hemisphären gibt es ein deutliches Maximum der Flüsse im Winter und ein Minimum im Sommer. Der Jahresgang ist in der NH wesentlich stärker ausgeprägt als in der Südhemisphäre, wobei die Nord-Pazifik-Box den größten Unterschied zwischen Sommer und Winter aufweist. Eine Ausnahme ist die Süd-Atlantik-Box, die auch Teile des südamerikanischen Kontinents beinhaltet und deren WCB Massenflüsse nicht im Winter, sondern im Frühjahr maximal sind. Dies ist darauf zurückzuführen, dass durch die stärkere Erwärmung der Landoberfläche die WCB Aktivität über dem südamerikanischen Kontinent im Frühjahr größer ist als im Winter. Ein ähnliches Maximum im Frühjahr ist auch bei der asiatischen und australischen Box zu beobachten.

Abbildung 14 zeigt die WCB Verteilung im Winter in Abhängigkeit des North Atlantic Oscillation (NAO) Index, der ein wichtiger Klimaparameter in der Nordhemisphäre ist (Hurrell, 1995). Der NAO Index wird über die Druckdifferenz zwischen Lissabon in Portugal und Stykkishólmur in Island definiert (Hurrell, 1995). Ein hoher NAO Index ist mit einer Verstärkung der nordatlantischen Westwindzone verbunden (Rogers, 1997), wobei die Zyklonen über dem Nordatlantik nordwärts verschoben und stationärer sind als bei Phasen mit normalem oder niedrigem NAO Index (Sickmüller et al., 2000). Es ist daher zu erwarten, dass die WCB Verteilung und Aktivität durch den NAO Index beeinflusst wird.

Im Mittel sind WCBs bei hohem NAO Index um etwa 12% häufiger als bei niedrigem NAO Index. Bei hohem NAO Index erstreckt sich die Region der WCB Startpunkte weiter nordöstlich (Abbildung 14b) als bei niedrigem NAO Index (Abbildung 14a), und die WCB Trajektorien erreichen nach 48 Stunden Gebiete, die etwa 10° bis 20° weiter östlich liegen (vergleiche Abbildung 14c und 14d). Obwohl die Unterschiede relativ klein zu sein scheinen, sind sie jedoch statistisch signifikant (Abbildung 14 e und 14 f). Der Transport in WCBs ist also bei hohem NAO Index schneller und weiter nördlich gelegen.

3. Schlussfolgerungen

Durch die Arbeiten, die die TUM München im Rahmen von CONTRACE durchgeführt hat, konnten für die Atmosphärenforschung im Bereich der Chemie und des Transports von atmosphärischen Spurenstoffen wichtige neue Ergebnisse erzielt werden. Die wichtigsten Schlussfolgerungen aus diesen Ergebnissen sind:

- WCBs sind der Hauptmechanismus für den Interkontinentaltransport von Schadstoffen. Sie sind im Winter wesentlich häufiger als im Sommer, und der mit ihnen verbundene Transport hängt von Klimaparametern wie zum Beispiel dem NAO Index ab.
- Tracertransportvorhersagen mit FLEXPART sind ein wertvolles Hilfsmittel bei der Flugplanung zur Vorhersage von Schadstofftransportereignissen. Es gelang mit Hilfe der Vorhersagen, das Messflugzeug gezielt in verschmutzte Luftmassen zu schicken.
- Die mit FLEXPART simulierten CO und NO_x Tracer zeigten eine gute Übereinstimmung mit den Messdaten. Mit Hilfe von Traceraltersspektren konnte das chemische Alter der an der Flugroute gemessenen Schadstoffe bestimmt werden, und aus den NO_x zu NO_y Verhältnissen war es möglich, die Auswaschung von NO_y während des Transports zu quantifizieren.

- Rückwärtssimulationen mit FLEXPART sind ein Ersatz für konventionelle Rückwärtstrajektorien, da FLEXPART im Gegensatz zu herkömmlichen Trajektorienmodellen Prozesse wie Turbulenz und Konvektion berücksichtigt. Ausserdem erlauben die Rückwärtssimulationen eine detaillierte Herkunftsanalyse und Rekonstruktion der an den Flugrouten oder Messstationen gemessenen Schadstoffe.
- Kurzlebige Substanzen wie NO₂ können in Atmosphärischen Highways innerhalb von 24 Stunden über interkontinentale Distanzen transportiert werden. Aufgrund der Häufigkeit von Atmosphärischen Highways im Winter, ist das klimatologische Mittel des NO_x Mischungsverhältnisses über Europa im Winter um etwa 2-3ppt erhöht, eine Menge, die ausreicht, um die Photochemie von O₃ (O₃ Produktion oder Zerstörung) signifikant zu beeinflussen.

4. Abweichungen vom Arbeitsplan

Die ursprünglich geplanten hochaufgelösten Simulationen mesoskaliger konvektiver Systeme mit dem nichthydrostatischen Wettervorhersagemodell MM5 konnten leider nicht durchgeführt werden, da der MM5 Experte Dr. Gerhard Wotawa, für den diese Aufgabe bestimmt war, aufgrund seines Arbeitsstellenwechsels zur CTBTO nicht an CONTRACE mitarbeitete.

Anstelle der Kombination des Konvektionsschemas im FLEXPART Modell mit Infrarot-Satellitenbildern wurde das Interface des Konvektionsschemas mit FLEXPART neu überarbeitet. Die ursprünglich sehr lange Rechenzeit für die Konvektion konnte dabei wesentlich verkürzt werden. Für die beiden CONTRACE Messkampagnen sind Simulationen mit dieser neuen Version der Konvektion bereits gemacht worden und werden zur Zeit ausgewertet.

Die Photochemiesimulationen mit einem Lagrange'schen Boxmodell wurden von unserem Projekt-Partner FZK-IFU (Institut für Atmosphärenforschung in Garmisch) übernommen.

5. Referenzen

- Baumann, K., and A. Stohl, Validation of a long-range trajectory model using gas balloon tracks from the Gordon Bennett Cup 95, *J. Appl. Meteorol.*, 36, 711-720, 1997.
- Browning, , K. A., Organization of clouds and precipitation in extratropical cyclones, in *Extratropical Cyclones: The Erik H. Palmén Memorial Volume*, edited by C. Newton and E. Holopainen, *Am. Meteorol. Soc.*, Boston, Mass., 1990.
- Burrows, J. P., M. Weber, M. Buchwitz, V. V. Rozanov, A. Ladstätter, Weissenmeyer, A. Richter, R. DeBeck, R. Hoogen, K. Bramstedt, and K. U. Eichmann, The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission concept and first scientific results, *J. Atmos. Sci.*, 56, 151-175, 1999.
- Cummins, K. L., M. J. Murphy, E. A. Bardo, W. L. Hiscox, R. B. Pyle, A. E. Pifer, A combined TOA/MDF technology upgrade of the U.S. National Lightning Detection Network, *J. Geophys. Res.*, 103, 9035-9044, 1998.
- Damoah, R., N. Spichtinger, C. Forster, P. James, I. Mattis, U. Wandinger, S. Beirle, T. Wagner, A. Stohl, Around the world in 17 days - hemispheric-scale transport of forest fire smoke from Russia in May 2003, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 4, 1449-1471, 2004.
- Eckhardt, S., A. Stohl, S. Beierle, N. Spichtinger, P. James, C. Forster, C. Junker, T. Wagner, U. Platt, and S. G. Jennings, The North Atlantic Oscillation controls air pollution transport to the Arctic, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1769-1778, 2003.
- Eckhardt, S., H. Wernli, P. James, C. Forster, N. Spichtinger, and A. Stohl, A 15-year climatology of warm conveyor belts, *J. Climate.*, 17, 218-237, 2004.

- ECMWF, User Guide to ECMWF Products 2.1, Meteorological Bulletin M3.2, ECMWF, Reading, UK, 1995.
- Emanuel K. A., and M. Živković-Rothman, Development and evaluation of a convection scheme for use in climate models. *J. Atmos. Sci.*, 56, 1766-1782, 1999.
- Forster, C., U. Wandinger, G. Wotawa, P. James, I. Mattis, D. Althausen, P. Simmonds, S. O'Doherty, S. G. Jennings, C. Kleefeld, J. Schneider, T. Trickl, S. Kreipl, H. Jäger, and A. Stohl, Transport of boreal forest fire emissions from Canada to Europe, *J. Geophys. Res.*, 106, 22887 – 22906, 2001.
- Forster, C., O. Cooper, A. Stohl, S. Eckhardt, P. James, E. Dunlea, D. K. Nicks Jr., J. S. Holloway, G. Hübler, D. D. Parrish, T. B. Ryerson, and M. Trainer, Lagrangian transport model forecasts and a transport climatology for the Intercontinental Transport and Chemical Transformation 2002 (ITCT 2k2) measurement campaign, *J. Geophys. Res.*, 109, D07S92, doi:10.1029/2003JD003589, 2004.
- Gibson, J. K., P. Kallberg, S. Uppala, A. Hernandez, A. Nomura, and E. Serrano, ECMWF Re-Analysis Project Report Series, 1. ERA-15 Description, Version 2, ECMWF, Reading, UK, 1999.
- Huntrieser, H., J. Heland, H. Schlager, C. Forster, A. Stohl, H. Aufmhoff, F. Arnold, E. Scheel, M. Campana, S. Gilge, R. Eixmann, and O. Cooper, Intercontinental air pollution transport from North America to Europe: Experimental evidence from airborne measurements and surface observations, in preparation for *J. Geophys. Res.*, 2004.
- Hurrell, J. W., Decadal trends in the North Atlantic Oscillation: Regional temperatures and precipitation. *Science*, 269, 676-679, 1995.
- Jeker, D. P., L. Pfister, A. M. Thompson, D. Brunner, D. Boccippio, K. E. Pickering, H. Wernli, Y. Kondo, J. Staehelin, Measurements of nitrogen oxides at the tropopause: Attribution to convection and correlation with lightning, *J. Geophys. Res.*, 105, 3679-3700, 2000.
- NIFC, National Interagency Fire Center, Reports, see <http://www.cidi.org/wildfire/index.html>, 2002.
- Olivier, J. G. J., et al., Description of EDGAR Version 2.0. A set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone depleting substances for all anthropogenic and most natural sources per country basis and on 1x1 grid. RIVM/TNO report, December 1996.
- Olivier, J. G. J., and J. J. M. Berdowsky, Global emission sources and sinks. In: Berdowski, J., Guicherit, R., and B. J. Heij (eds.), *The Climate System*, pp. 33-78. A. A. Balkema Publishers/Swets and Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands. ISBN 90 5809 255 0, 2001.
- Parrish D. D., M. Trainer, D. Hereid, E. J. Williams, K. J. Olszyna, R. A. Harley, J. F. Meagher, and F. C. Fehsenfeld, Decadal change in carbon monoxide to nitrogen oxide ratio in U.S. vehicular emissions, *J. Geophys. Res.*, 107 (D12), doi:10.1029/2001JD000720, 2002.
- Rogers, J. C., North Atlantic stormtrack variability and its association to the north Atlantic oscillation and climate variability of northern Europe. *J. Clim.*, 10, 1635-1647, 1997.
- Sickmüller, M., B. Blender, K. Fraedrich, Observed winter cyclone tracks in the northern hemisphere in re-analysed ECMWF data, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 126, 591-620, 2000.

- Spichtinger, N., M. Wenig, P. James, T. Wagner, U. Platt, and A. Stohl, Satellite detection of a continental-scale plume of nitrogen oxides from boreal forest fires, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 4579--4582, 2001.
- Stohl, A., A 1-year Lagrangian "climatology" of airstreams in the Northern Hemisphere troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 106, 7263-7279, 2001.
- Stohl, A., M. Hittenberger, and G. Wotawa, Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data, *Atmos. Env.*, 24, 4245--4264, 1998.
- Stohl, A., and D. J. Thomson, A density correction for Lagrangian particle dispersion models, *Boundary-Layer Meteorol.*, 90, 155--167, 1999.
- Stohl, A., and T. Trickl, A textbook example of long-range transport: Simultaneous observation of ozone maxima of stratospheric and North American origin in the free troposphere over Europe, *J. Geophys. Res.*, 104, 30445-30462, 1999.
- Stohl, A., G. Wotawa, P. Seibert, and H. Kromp-Kolb, Interpolation errors in windfields as a function of spatial and temporal resolution and their impact on different types of kinematic trajectories, *J. Appl. Meteor.* 34, 2149-2165, 1995.
- Stohl, A., L. Haimberger, M. P. Scheele, and H. Wernli, An intercomparison of results from three trajectory models. *Meteorol. Appl.*, 8, 127-135, 2001.
- Stohl, A., S. Eckhardt, C. Forster, P. James, N. Spichtinger, and P. Seibert, A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurements, *Atmos. Env.*, 36, 4635-4648, 2002a.
- Stohl, A., S. Eckhardt, C. Forster, P. James, and N. Spichtinger, On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport. *J. Geophys. Res.*, 107, 4684, doi:10.1029/2001JD001396, 2002b.
- Stohl, A., C. Forster, S. Eckhardt, H. Huntrieser, J. Heland, H. Schlager, H. Aufmhoff, F. Arnold, and O. Cooper, 2003: A backward modeling study of intercontinental pollution transport using aircraft measurements, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 4370, doi:10.1029/2002JD002862, 2003a.
- Stohl A., H. Huntrieser, A. Richter, S. Beirle, O. Cooper, S. Eckhardt, C. Forster, P. James, N. Spichtinger, M. Wenig, T. Wagner, J. Burrows, and U. Platt, 2003: Rapid intercontinental air pollution transport associated with a meteorological bomb, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 969-985, 2003b.
- Wernli, H., and H. C. Davies, A Lagrangian-based analysis of extra-tropical cyclones, I, The method and some applications, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 123, 467-489, 1997.

6. TUM Publikationen im Rahmen von CONTRACE (gesamter Projektzeitraum)

- Cooper, O., C. Forster, D. D. Parrish, M. Trainer, E. Dunlea, T. Ryerson, G. Hübler, F. Fehsenfeld, D. Nicks, J. Holloway, J. Nowak, C. Brock, J. de Gouw, C. Warneke, J. Roberts, F. Flocke, and J. Moody, A case study of trans-Pacific warm conveyor belt transport: The influence of merging airstreams on trace gas import to North America, *J. Geophys. Res.*, in press, 2004.
- Cooper, O., C. Forster, M. Trainer, D. D. Parrish, E. Dunlea, G. Hübler, F. Fehsenfeld, J. S. Holloway, S. J. Oltmans, B. J. Johnson, and A. Wimmers, On the life cycle of a stratospheric intrusion and its subsequent mixing with polluted warm conveyor belts, *J. Geophys. Res.*, in press, 2004.
- Eckhardt, S., H. Wernli, P. James, C. Forster, N. Spichtinger, and A. Stohl, A 15-year climatology of warm conveyor belts, *J. Climate.*, 17, 218-237, 2004.

- Forster, C., O. Cooper, A. Stohl, S. Eckhardt, P. James, E. Dunlea, D. K. Nicks Jr., J. S. Holloway, G. Hübler, D. D. Parrish, T. B. Ryerson, and M. Trainer, Lagrangian transport model forecasts and a transport climatology for the Intercontinental Transport and Chemical Transformation 2002 (ITCT 2k2) measurement campaign, *J. Geophys. Res.*, 109, D07S92, doi:10.1029/2003JD003589, 2004.
- Lawrence, M. G., P. J. Rasch, R. von Kuhlmann, J. Williams, H. Fischer, M. de Reus, J. Lelieveld, P. J. Crutzen, M. Schultz, P. Stier, H. Huntrieser, J. Heland, A. Stohl, C. Forster, H. Elbern, H. Jakobs, and R. R. Dickerson, Global chemical weather forecasts for field campaign planning: predictions and observations of large-scale features during MINOS, CONTRACE and INDOEX. *Atmos. Chem. Phys.* 3, 267-289, 2003.
- Stohl, A., C. Forster, S. Eckhardt, H. Huntrieser, J. Heland, H. Schlager, H. Aufmhoff, F. Arnold, and O. Cooper, 2003: A backward modeling study of intercontinental pollution transport using aircraft measurements, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 4370, doi:10.1029/2002JD002862, 2003a.
- Stohl A., H. Huntrieser, A. Richter, S. Beirle, O. Cooper, S. Eckhardt, C. Forster, P. James, N. Spichtinger, M. Wenig, T. Wagner, J. Burrows, and U. Platt, 2003: Rapid intercontinental air pollution transport associated with a meteorological bomb, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 969-985, 2003b.
- Stohl, A., S. Eckhardt, C. Forster, P. James, N. Spichtinger, and P. Seibert, A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurements, *Atmos. Env.*, 36, 4635-4648, 2002a.
- Stohl, A., S. Eckhardt, C. Forster, P. James, and N. Spichtinger, On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport. *J. Geophys. Res.*, 107, 4684, doi:10.1029/2001JD001396, 2002b.