

Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre (ICG)  
Troposphäre (ICG-2)

# **Zur Klimatologie von Stickoxiden, Ozon und Kohlenmonoxid in der Troposphäre: eine Analyse des MOZAIC-Datensatzes**

*Katja Petzoldt*





# **Zur Klimatologie von Stickoxiden, Ozon und Kohlenmonoxid in der Troposphäre: eine Analyse des MOZAIC-Datensatzes**

*Katja Petzoldt*

Berichte des Forschungszentrums Jülich; 4327  
ISSN 0944-2952  
Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre (ICG)  
Troposphäre (ICG-2)  
Jül-4327

D 82 (Diss., RWTH Aachen, Univ., 2010)

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)  
unter <http://www.fz-juelich.de/zb/juwel>

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek, Verlag  
D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland  
☎ 02461 61-5220 · Telefax: 02461 61-6103 · e-mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)

## KURZZUSAMMENFASSUNG

Das Spurengas Ozon ist ein bedeutendes Treibhausgas in der Tropopausenregion. Nahe der Erdoberfläche wirkt es toxisch auf den Menschen und die Biosphäre. Die Bildung von Ozon in der Troposphäre erfolgt über Reaktionsketten der sogenannten Vorläufersubstanzen Kohlenmonoxid, Stickoxide und flüchtige Kohlenwasserstoffverbindungen. Stratosphärisches Ozon schützt die Erdoberfläche vor kurzweiliger Strahlung und wird durch die Photolyse von Sauerstoff gebildet. Im Rahmen des MOZAIC-Projektes (Measurement of ozone, water vapour, carbon monoxide, and nitrogen oxides by Airbus in-service aircraft) wurde ein in dieser Art einmaliger weitgehend globaler Datensatz von Ozon-, Kohlenmonoxid- und Stickoxidkonzentrationen aus Flugzeugmessungen gewonnen. In der vorliegenden Arbeit werden die Konzentrationsverteilungen von Ozon, Stickoxiden und Kohlenmonoxid nach klimageographischen Gesichtspunkten untersucht. Nach einer Einleitung und Grundlagen der Emissionsmuster der relevanten Spurenstoffe, der Photochemie der Gase in der Troposphäre und der Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre sowie einer Beschreibung des MOZAIC-Datensatzes wird zunächst der Bereich der oberen Troposphäre betrachtet. Im Tropopausenbereich fallen entlang der MOZAIC-Flugrouten Bereiche auf, in denen die Ozon- und Stickoxidkonzentrationen höher sind als in anderen Regionen. Kohlenmonoxid ist aufgrund seiner längeren Lebensdauer von mehreren Monaten räumlich weniger variabel und in der Troposphäre homogener durchmischt. Als mögliche Quelle für Stickoxidoxide und Kohlenmonoxid in der oberen Troposphäre werden anhand von drei Fallbeispielen der Einfluss von Blitzen und Konvektionsprozessen untersucht. Es zeigt sich eine hohe Korrelation zwischen Stickoxiden und Kohlenmonoxid bei starker Konvektion, was auf die belastete Grenzschicht als Quelle für beide Spurenstoffe schließen lässt. Die Stickstoffkonzentrationen sind allein erhöht bei starker Gewittertätigkeit, die Korrelation mit Kohlenmonoxid ist gering. Die Befunde lassen den Einfluss synoptischer Prozesse auf die Spurenstoffkonzentrationen in der oberen Troposphäre vermuten. Hohe Konzentrationen von Ozon und Stickoxiden fallen über den Ostküsten Nordamerikas und Ostasiens sowie über der arabischen Halbinsel auf. Da diese Regionen jeweils charakteristischen Klimazonen zugeordnet werden können, werden 50 MOZAIC-Flughäfen in einem nächsten Schritt den Klimaklassen nach Köppen und Geiger, erweitert durch Kottek et al. 2006, zugeteilt. Die Einteilung in Klimazonen erweist sich besonders im Hinblick auf die Ozondaten als sinnvoll. Die Profile innerhalb der Klimazonen zeigen große Ähnlichkeiten. In den Mittelbreiten fallen Unterschiede zwischen den West- und Ostseiten der Kontinente auf. An den Ostseiten mit den wärmeren Sommern liegen die Ozonkonzentrationen und die Tropopause durch größere Ausdehnung im Sommer höher. Weiter werden Wind- und Spurenstoffrosen nach Jahreszeit

in Bodennähe und in der freien Troposphäre betrachtet. Dies zeigt, dass die Konzentrationen von Ozon und Kohlenmonoxid im Umfeld der Flughäfen von der Anströmrichtung des Windes bestimmt werden. Ist die Schadstoffbelastung durch Kohlenmonoxid am Flughafen höher, sind gleichzeitig die Ozonkonzentrationen geringer. Jahresgänge der Spurenstoffkonzentrationen für verschiedene Höhen zeigen im Wasserdampfmischungsverhältnis die Regenzeiten in den Tropen sowie erneut der Unterschied zwischen Ost- und Westseiten der Kontinente in den Mittelbreiten. Erstere weisen deutlich höhere Konzentrationen und eine markantere Spitze im Sommer auf. Bei den Ozonkonzentrationen zeigen sich Unterschiede innerhalb der östlichen Kontinente in den Mittelbreiten. Im Osten der USA liegt das Ozonmaximum im Hochsommer, in Ostasien hingegen im Frühsommer. Diese Unterschiede innerhalb einer Klimazone führen zu der Überlegung, den Einfluss von Zirkulationsmustern mit einzubeziehen zur Klassifizierung der Konzentrationsverteilungen. Für den Osten der USA wird eine Wetterlagenklassifikation auf Basis des statistischen Verfahrens der *self-organising maps* angewandt. Die Zeitreihe der Zirkulationsmuster wird in Auftreten und Unterscheidbarkeit der Cluster mit den Zeitreihen zweier anderer unabhängiger Methoden zur Wetterlagenklassifikation im Vergleichszeitraum verglichen. Die Trennbarkeit der Spurengaskonzentrationen anhand der Wetterlagen wird mithilfe eines verteilungsfreien statistischen Tests untersucht und mit der saisonalen Trennbarkeit verglichen. Die Konzentrationsverteilungen von Ozon und dem Wasserdampfmischungsverhältnis in den Wetterlagen zeigen sich von den Jahreszeiten überlagert. Die in den Wetterlagen enthaltene Information über die synoptische Situation gibt Auskunft über die Herkunft der Luftmassen und den Einfluss von stratosphärischen Intrusionen, *warm conveyor belts* etc. Dies ist neben den Ozonverteilungen besonders für das gut durchmischte und langlebige Kohlenmonoxid von Bedeutung, da sich hohe Konzentrationen in verschiedenen Jahreszeiten näher spezifizieren lassen. Wetterlagen weisen ein Strömungsbild von Luftmassen als direktes Resultat der strahlungsbedingten Druckverteilung für einen Großraum auf. Eine Charakterisierung von Spurengasverteilungen auf dieser Basis ermöglicht die Identifizierung von vielfach in Fallstudien nachgewiesenen, für bestimmte Konzentrationsverteilungen verantwortliche synoptische Situationen. Somit lassen sich geographische Raumeinheiten ausweisen, die, wie die vorliegende Arbeit zeigt, auch Ähnlichkeiten in der Konzentrationsverteilung verschiedener Spurenstoffe zeigen und neben der die Jahreszeiten bedingende geographische Breite auch die komplexen durch den unterschiedlichen Energiehaushalt von Land- und Wassermassen hervorgerufene Zirkulationsmuster berücksichtigen. Die vorgestellte Methode ist anwendbar auf alle Regionen der Erde auf der synoptischen Skala.

## ABSTRACT

Tropospheric ozone is an effective greenhouse gas in the tropopause region. Near the surface it is toxic for humans and the ecosystem. It is produced by precursors nitrogen oxides, carbon monoxide, and hydrocarbons, so called volatile organic compounds. Stratospheric ozone protects the earth surface from shortwave radiation and is built by photolysis of oxygen. Within the scope of the EU-funded Project MOZAIC (Measurement of ozone, water vapor, carbon monoxide, and nitrogen oxides by Airbus in-service aircraft) measurements made since 1994 aboard five A-340 long range aircraft on scheduled flights around the globe provide useful information on air quality in the environment of many cities. With the work at hand the trace gas concentrations of ozone, nitrogen oxides, and carbon monoxide are analysed from a geographical point of view. An introduction to the emission patterns of the relevant trace gases, tropospheric ozone chemistry, and the atmospheric circulation as well as an overview of the MOZAIC project is followed by a regard of the upper troposphere first. Some regions in the tropopause region are highlighted by higher Ozone and nitrogen oxides than others. Carbon monoxide shows a minor spatial variability and is well mixed. As a potential source of nitrogen oxides and carbon monoxide three case studies are examined on the influence of lightning and convection. A strong correlation is found for nitrogen oxides and carbon monoxide in case of convection which shows evidence of boundary layer sources for both trace gases. Nitrogen oxides only are enhanced in case of intense lightning. The correlation with carbon monoxide is weak. The findings point to a strong influence of the synoptic situation on trace gas concentrations in the upper troposphere. High concentrations of ozone and nitrogen oxides occur over eastern North America and eastern Asia as well as over the Arabian peninsular. These regions belong to characteristic climate zones. Therefore the relevant MOZAIC airports are grouped to the climate zones developed by Koeppen and recently revised by Kottke et al. (2006). Vertical profiles of ozone show similarities in between the climates. The extratropical midlatitudes show differences between the eastern and western parts of the continents. Low ozone concentrations in summer 10 - 12 km altitude indicate a higher tropopause in the eastern parts with higher temperatures in summer. A further look is taken on seasonal wind roses for surface and free troposphere. There is evidence that the concentrations of ozone and carbon monoxide in the vicinity of the chosen airports is determined by wind direction. High carbon monoxide burden comes along with lower ozone concentrations. Further the annual cycles of the different trace gases are examined at several altitude levels. The water vapour mixing ratio reveals the wet and dry seasons in the tropics as well as the difference between western and eastern parts of the continent. The latter shows higher concentrations and a

much sharper peak in summer. The ozone concentrations show differences within the eastern midlatitude parts of the continents. Over the United States East Coast the ozone maximum is at midsummer, whereas in Eastern Asia the ozone maximum appears in early summer. The discrepancies within a climate caused the consideration to include the influence of circulation patterns. A weather type classification based on *self-organizing maps* is applied to analyse the trace gas concentrations in the Eastern United States. The time series of circulation patterns for the corresponding period of available MOZAIC data is compared with the output of two independent classification methods. The separation of trace gas concentration in between the weather patterns is analysed with the help of a non-parametrical statistical test and is compared to the separation by seasons. The concentrations of ozone and water vapor separated by weather types are overlaid by the seasonal footprint. The circulation patterns provide information about the synoptic situation, therewith about the origin of air masses, the influence of stratospheric intrusions, warm conveyor belts etc. Therewith, high concentrations of long-living carbon monoxide in different seasons can be characterized. Weather types show the circulation patterns of air masses which result directly from the actinic driven pressure distribution over a region. Therewith, it is possible to identify geographical regions which show similarities in the distributions of different trace gases. In addition to the latitude that causes the seasons, those geographical units are characterized by complex circulation patterns, caused by the different energy budget of ocean and land masses. Those circulation patterns obviously contribute extensively to the trace distribution in a region at different altitude levels. The introduced method can be applied to any region at the synoptic scale.

# INHALT

Abbildungsverzeichnis	II
Tabellenverzeichnis	V
Akronyme	VII
1. Einleitung	1
2. Grundlagen zur Ozonchemie und Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre	5
2.1 Emissionen von Spurenstoffen	5
2.2 Die Photochemie der Gase in der Troposphäre	11
2.3 Allgemeine Zirkulation der Atmosphäre	18
3. MOZAIC – Projektbeschreibung und Datensatz	32
4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre	36
4.1 Mittlere O <sub>3</sub> -, CO- und NO <sub>y</sub> -Verteilung in der oberen Troposphäre	38
4.2 Jahresgang der Spurengase über dem Nordatlantik	42
4.3 Zusammenhang von Blitzen und Stickoxid-Konzentrationen an den Fallbeispielen Frankfurt und New York	46
4.4 Klimatologie der Spurengase in der unteren und mittleren Troposphäre	58
4.4.1 Charakterisierung der Flughäfen	58
4.4.2 Saisonale Vertikalprofile von O <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O, NO <sub>y</sub> und CO	62
4.4.3 Einfluss der Windrichtung an den Flughäfen	70
4.4.4 Wind- und Spurenstoffrosen für verschiedene Höhen	81
4.4.5 Jahresgänge über 12 Höhenniveaus an ausgewählten Flughäfen	93
5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen	108
5.1 Wetterlagenklassifikation anhand von Self-organising Maps	110
5.2 Vergleich der aus SOM abgeleiteten Wetterlagen mit Wetterlagenklassifikationen einer hierarchischen Clusteranalyse (HAC) und einem Expectation-Maximation-Ansatz (EM)	115
5.3 Trennbarkeit der Spurengaskonzentrationen nach Wetterlagen und Jahreszeiten anhand von Häufigkeitsverteilungen	126
5.4 Anwendung des U-Testes nach Mann/Whitney	128
5.5 Ergebnisse des U-Testes für Ozon auf Basis der SOM-Wetterlagen	131
5.6 Ergebnisse des U-Testes für das Wasserdampf-Mischungsverhältnis	139
5.7 Ergebnisse des U-Testes für Kohlenmonoxid	145
6. Zusammenfassung	151
Literaturverzeichnis	156
Anhang	166

# ABBILDUNGSVERZEICHNIS

Abbildung 2.1	Jährliche Stickstoffemissionsrate pro Breitengrad und geographische Breite für das Jahr 2000 .....	7
Abbildung 2.2	Verbrannter Kraftstoff und Emissionen (durchgezogene Linie) als Funktion der Breite für den Flugverkehr im Mai 1999. ....	8
Abbildung 2.3	Übersicht der wichtigsten Reaktionen der Photooxidantienbildung. Die Reaktionen der NO <sub>x</sub> sind grün umrandet, diejenigen der RO <sub>x</sub> -Kette rot, die Abbruchreaktionen sind violett dargestellt.. ....	17
Abbildung 2.4	Übergang der Zonal- in die Wellenzirkulation und Entstehung von Kaltlufttropfen und Warmluftinseln .....	23
Abbildung 2.5	Entstehung außertropischer Zyklonen .....	24
Abbildung 2.6	Druckverhältnisse und Witterungserscheinungen beim Durchzug einer Zyklone.....	25
Abbildung 2.7	Allgemeine Zirkulation der Atmosphäre .....	27
Abbildung 2.8	Luftdruckverteilung und Luftströmung für die bodennahe Reibungszone im Juli ....	29
Abbildung 2.9	Luftdruckverteilung und Luftströmung für die bodennahe Reibungszone im Januar	29
Abbildung 2.10	Luftströmung im Bereich einer außertropischen Zyklone .....	30
Abbildung 3.1	Übersicht der MOZAIC-Flugrouten .....	35
Abbildung 4.1	Ozonverteilung in ppb in der oberen Troposphäre .....	39
Abbildung 4.2	Kohlenmonoxidverteilung in ppb in der oberen Troposphäre .....	40
Abbildung 4.3	Stickoxidverteilung in der oberen Troposphäre .....	41
Abbildung 4.4	Jahresgänge der Ozon-, Kohlenmonoxid- und Stickoxidkonzentration in der unteren Stratosphäre und oberen Troposphäre, Nordatlantik .....	42
Abbildung 4.5	Korrelation von Stickoxiden und Ozon in der unteren Stratosphäre über dem Nordatlantik .....	43
Abbildung 4.6	Verhältnis von Stickoxiden a) zu Ozon und b) zu Kohlenmonoxid in der oberen Troposphäre.....	44
Abbildung 4.7	Vertikalprofile des Landeanflugs auf Frankfurt am 20.07.2004 .....	46
Abbildung 4.8a, 4.8b	Bodendruckkarten des Deutschen Wetterdienstes am 20.07.2004 18:00 UTC und am 21.07.2004 00:00 UTC .....	48
Abbildung 4.9a	Temperaturprofil und 4.9b Ozonprofil der unteren Troposphäre beim Landeanflug auf Frankfurt am 21.07.2004 .....	49
Abbildung 4.10	Vertikalprofile der Landeanflüge auf New York, JFK am 12.07.2004 .....	50
Abbildung 4.11	Blitzvorkommen am 12.07.2004 über den USA, 1°x1° Auflösung .....	51
Abbildungen 4.12a - e	Abbildungen der ausgehenden langwelligen Strahlung am 12. und 20.07.2004 über dem Osten der USA.....	53
Abbildung 4.13	Verhältnis von Stickoxiden zu Kohlenmonoxid über der Ostküste der USA am 12.07.2004.....	57
Abbildung 4.14	Karte der Klimazonen nach Wladimir Köppen 1936 und Rudolf Geiger 1961, ergänzt und aktualisiert durch Kottek et al. 2006.....	59
Abbildung 4.15	Globale Verteilung der MOZAIC-Flughäfen mit > 50 Vertikalprofilen .....	61
Abbildung 4.16a	Vertikalprofile von Ozon der Flughäfen der Klimazone Cfa.....	64

Abbildung 4.16b	Vertikalprofile von Ozon der Flughäfen der Klimazone Cfa.....	65
Abbildung 4.17	Vertikalprofile der Stickoxide der Klimazone Cfa .....	66
Abbildung 4.18	Vertikalprofile der Relativen Feuchte der Flughäfen der Klimazone Aw.....	69
Abbildung 4.19	Vertikalprofile für Caracas .....	71
Abbildung 4.20	Windrosen für Caracas, zwischen Erdoberfläche und 500 Meter ü. NN .....	72
Abbildung 4.21	Windrosen für Caracas, zwischen 1000 und 1500 Meter ü. NN.....	73
Abbildung 4.22	Windrosen für New York, zwischen Erdoberfläche und 500 Meter ü. NN .....	74
Abbildung 4.23	Windrosen für New York, zwischen 1000 und 1500 Meter ü. NN.....	75
Abbildung 4.24	Vertikalprofile für New York .....	76
Abbildung 4.25	Windrosen für Frankfurt, zwischen Erdboden und 500 Meter ü. NN .....	77
Abbildung 4.26	Windrosen für Frankfurt, 1000 und 1500 Meter ü. NN.....	78
Abbildung 4.27	Vertikalprofile für Frankfurt.....	79
Abbildung 4.28	Wind- und Spurenstoffrosen in der freien Troposphäre, Atlanta .....	83
Abbildung 4.29	Wind- und Spurenstoffrosen in der freien Troposphäre, Boston .....	84
Abbildung 4.30	Wind- und Spurenstoffrosen in der freien Troposphäre, New York .....	85
Abbildung 4.31	Wind- und Spurenstoffrosen in der freien Troposphäre, Washington.....	86
Abbildung 4.32a-c	prozentuale Abweichung vom regionalen Mittel.....	90
Abbildungen 4.33 a-k	Jahresgänge der Ozonkonzentration .....	96
Abbildungen 4.34 a-k	Jahresgänge des Wasserdampf-Mischungsverhältnisses .....	99
Abbildungen 4.35 a-l	Jahresgänge der CO-Konzentration .....	103
Abbildungen 4.36 a-h	Jahresgänge der Stickstoffkonzentrationen.....	106
Abbildung 5.1	Druckmuster der Wetterlagen über dem Osten der USA 1994-2005, SLP .....	112
Abbildung 5.2	Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen aus SOM .....	113
Abbildung 5.3	Zeitreihen der Wetterlagen aus Self-Organising Maps von 1994 bis 2005 .....	114
Abbildung 5.4	Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen aus HAC für den Zeitraum 1994-1999 .....	116
Abbildung 5.5	Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen aus EM für den Zeitraum 1994-1999 .....	116
Abbildung 5.6	Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen aus SOM für den Zeitraum 1994-1999 .....	117
Abbildung 5.7	Vertikalprofile von Ozon nach HAC.....	122
Abbildung 5.8	Vertikalprofile der spezifischen Feuchte nach HAC.....	122
Abbildung 5.9	Vertikalprofile Ozon EM.....	123
Abbildung 5.10	Vertikalprofile der spezifischen Feuchte EM .....	123
Abbildung 5.11	Vertikalprofile Ozon SOM.....	124
Abbildung 5.12	Vertikalprofile Wasserdampfmischungsverhältnis SOM .....	124
Abbildung 5.13	Signifikanz der z-Werte in Abhängigkeit von n .....	129
Abbildung 5.14	Ozonverteilung nach Wetterlagen Atlanta 0-500m über Grund.....	136
Abbildung 5.15	Ozonverteilung nach Wetterlagen Atlanta 3000-4500m über Grund.....	136
Abbildung 5.16	Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 0-500m Jahreszeiten .....	146
Abbildung 5.17	Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 0-500m Wetterlagen .....	147
Abbildung 5.18	Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 2500-3000m Jahreszeiten .....	148

Abbildung 5.19	Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 2500-3000mWetterlagen .....	148
Abbildung 5.20	Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 4500-6000mJahreszeiten .....	149
Abbildung 5.21	Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 4500-6000mWetterlagen .....	149
Abbildung A1	Vertikalprofile für Ozon an den Flughäfen der Klimazone Af.....	167
Abbildung A2	Vertikalprofile von Kohlenmonoxid an den Flughäfen der Klimazone Cfa.....	168
Abbildung A3	Vertikalprofile der Relativen Feuchte an den Flughäfen der Klimazone Cfa .....	169
Abbildung A4	Vertikalprofile von Ozon an den Flughäfen der Klimazone Df .....	170
Abbildung A5	Vertikalprofile von Ozon an den Flughäfen der Klimazone Cs .....	171

# TABELLENVERZEICHNIS

Tabelle 2.1	Prozent des global verbrannten Treibstoffes, emittierten NO <sub>x</sub> und der geflogenen Distanzen in ausgesuchten Regionen der Erde	8
Tabelle 2.2	Verbrannter Treibstoff und Emissionen des regulären Flugverkehrs für jeden Monat des Jahres 1999	9
Tabelle 2.3	Der Beitrag biogener Emissionen aus Böden und Pflanzen zu den globalen Kreisläufen verschiedener Oxidantien-Vorläufergase	10
Tabelle 2.4	Lebensdauer, Mischungsverhältnis und Quellstärke für CO, NO <sub>x</sub> , VOC, O <sub>3</sub>	10
Tabelle 4.1	Einteilung der MOZAIC-Flughäfen in die Klimazonen nach Köppen 1935 und Geiger 1961, aktualisiert durch Kottek 2006	60
Tabelle 4.2	Geographische Charakteristika der Flughäfen/Lage zur Stadt	63
Tabelle 4.3	Wind- und Spurenstoffrosen in der freien Troposphäre	87
Tabelle 4.4	Übersicht über die Flughäfen mit Anzahl der Start- und Landprofile sowie Ankunfts- bzw. Abflugzeiten bzw. intervallen in UTC	89
Tabelle 5.1	Kreuztabelle der aus SOM und aus EM abgeleiteten Wetterlagen	117
Tabelle 5.2	Kreuztabelle der aus SOM und aus HAC abgeleiteten Wetterlagen	118
Tabelle 5.3	Kreuztabelle der aus HAC und aus EM abgeleiteten Wetterlagen	118
Tabelle 5.4	Liste der MOZAIC-Flughäfen im Bereich USA-Ost, Stand August 2005	121
Tabelle 5.5	z-Werte für Ozon in New York, alle Höhenniveaus	132
Tabelle 5.6	z-Werte Ozon New York alle Wetterlagen in Frühjahr und Sommer	133
Tabelle 5.7	z-Werte Ozon New York alle Wetterlagen in Herbst und Winter	134
Tabelle 5.8	z-Werte Wasserdampf-Mischungsverhältnis New York	139
Tabelle 5.9	z-Werte Wasserdampf-Mischungsverhältnis Wetterlagen, Frühjahr und Sommer	140
Tabelle 5.10	z-Werte Wasserdampf-Mischungsverhältnis Wetterlagen, Herbst und Winter	141
Tabelle 5.11	Bestimmtheitsmaß z-Werte H <sub>2</sub> O gegen Differenz Temperaturmittelwerte	142
Tabelle 5.12	Bestimmtheitsmaß z-Werte gegen Differenz Temperaturmittelwerte	143
Tabelle 5.13	Bestimmtheitsmaß z-Werte Differenz Temperaturmittelwerte	144
Tabelle 5.14	z-Werte Kohlenmonoxid New York	145
Tabelle A1	Charakteristika der Flughäfen	166
Tabelle A2	z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach Vrac: HAC, Wetterlagen in Jahreszeiten	172
Tabelle A3	z-Werte Ozon USA-Ost nach Vrac: HAC, Wetterlagen in Jahreszeiten	173
Tabelle A4	z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach Vrac: EM Wetterlagen in Jahreszeiten	174
Tabelle A5	z-Werte Ozon USA-Ost nach Vrac: EM, Wetterlagen in Jahreszeiten	175
Tabelle A6	z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach Vrac: EM, Wetterlagen und Jahreszeiten	176
Tabelle A7	z-Werte Ozon USA-Ost nach Vrac: EM, Wetterlagen und Jahreszeiten	176

Tabelle A8	z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach Vrac: HAC, Wetterlagen und Jahreszeiten	177
Tabelle A9	z-Werte Ozon USA-Ost nach Vrac: HAC, Wetterlagen und Jahreszeiten	177
Tabelle A10	z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach SOM, Wetterlagen in Jahreszeiten	178
Tabelle A11	z-Werte Ozon USA-Ost nach SOM, Wetterlagen in Jahreszeiten	179
Tabelle A12	z-Werte Ozon USA-Ost nach SOM, Wetterlagen in Jahreszeiten	180
Tabelle A13	z-Werte Ozon USA-Ost nach SOM, Wetterlagen in Jahreszeiten	180
Tabelle A14	Test der Verteilungen in Wetterlagen und Jahreszeiten auf Normalverteilung, Atlanta	181
Tabelle A15	Test der Verteilungen in Wetterlagen und Jahreszeiten auf Normalverteilung, Washington	182
Tabelle A16	Test der Verteilungen in Wetterlagen und Jahreszeiten auf Normalverteilung, New York	183
Tabelle A17	Test auf der Verteilungen in Wetterlagen und Jahreszeiten auf Normalverteilung, USA-Ost	184

# AKRONYME

CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
CHAMP	Challenging Minisatellite Payload
ECMWF	European Centre for Medium Range Weather Forecast
ICG II	Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre II, Troposphäre, Forschungszentrum Jülich
INTEX	Intercontinental Chemical Transport Experiment
MOPITT	Measurement of Pollution in the Troposphere (satellite instrument)
MOZIAC	Measurements of Ozone by Airbus In-Service Aircraft
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NCEP/NCAR	National Centers for Environmental Prediction and the National Center for Atmospheric Research.
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
OLR	Outgoing longwave Radiation
SOM	Self-organising Maps
UTC	Universal Time Coordinated

## 1. EINLEITUNG

Troposphärisches Ozon ist ein wichtiger sekundärer Spurenstoff. Je nach geographischer Breite und Jahreszeit befinden sich zwischen 5% und 10% des gesamten atmosphärischen Ozons in der Troposphäre (Fabian 1992:73). Es wirkt aufgrund seiner Absorptionsbanden im atmosphärischen Fenster bei 9,6  $\mu\text{m}$  als effektives Treibhausgas. Durch die Photolyse von Ozon bei Wellenlängen größer als 310 nm entsteht in Anwesenheit von Wasserdampf das OH-Radikal, auf dessen Oxidationswirkung der Selbstreinigungsmechanismus der Atmosphäre beruht.

In erhöhten Konzentrationen wirkt Ozon toxisch auf Menschen und Pflanzen, die Risikoschwelle für gesundheitliche Schäden liegt bei 120 ppb. Diese Konzentrationen können bei sogenannten Sommersmog-Perioden schnell erreicht werden. Letztere entstehen bei hohen anthropogenen Emissionsraten von Stickoxiden, Kohlenmonoxid und Kohlenwasserstoffen unter der Einwirkung intensiver Sonneneinstrahlung (Fabian 1992:65). Modellrechnungen haben ergeben, dass der stratosphärische Ozoneintrag durch dynamische Austauschprozesse einen deutlich geringeren Anteil hat an der troposphärischen Ozonkonzentrationen im Verhältnis zum photochemisch, in Abhängigkeit der Stickoxidkonzentration, produzierten Anteil (Liu et al. 1987). Daher sind Kenntnisse zur Verteilung der Vorläufersubstanzen der troposphärischen Ozonbildung, Kohlenmonoxid und Stickoxide, sowie zu den dynamischen Prozessen erforderlich. In der Stratosphäre wird Ozon durch die Photodissoziation von Sauerstoff bei Wellenlängen unter 242 nm produziert (Graedel und Crutzen 1994:160). Die Troposphäre erreicht hingegen nach Absorption in den oberen Atmosphärenschichten nur langwelligere Strahlung oberhalb 290 nm, daher scheidet dieser Prozess zur Ozonbildung aus (Fabian 1992:63).

Seit den ersten kontinuierlichen Ozonmessungen am Observatorium Montsouris außerhalb von Paris im 19. Jahrhundert haben sich im Zuge der Industrialisierung die troposphärischen Ozonkonzentration in ländlichen Gegenden weiten Teilen der Nordhemisphäre mehr als verdoppelt (Volz und Kley 1988). Staehelin et al. (1994) fanden beim Vergleich von Messungen an einer alpinen Station in der Schweiz einen Anstieg um den Faktor 2.2 zwischen den fünfziger Jahren und Anfang der neunziger Jahre (Staehelin et al. 1994).

## 1. Einleitung

Im Jahr 1958 wurde durch Arie Haagen-Smit nachgewiesen, dass Ozon in Regionen mit hohen Stickoxidkonzentrationen lokal produziert wird (Haagen-Smit 1958). Chameides und Walker fanden 1973 in der Methan-Oxidationskette eine starke lokale Quelle für Ozon (Chameides und Walker 1973). Crutzen zeigte 1973, dass durch die Oxidation von Methan und Kohlenmonoxid Ozon auch fernab von Emissionsquellen in Anwesenheit von Stickoxiden photochemisch gebildet wird (Crutzen 1973). Die Höhe der Stickoxidkonzentration ist für die troposphärische Ozonproduktion von entscheidender Bedeutung (Crutzen 1979). Allerdings gab es im Vorfeld der MOZAIC-Messungen kaum Aufschluss über ihre globale Verteilung (vgl. Emmons et al. 1997) sowie auf die beeinflussenden Faktoren wie elektrische Entladungen bei Gewittern, anthropogene Emissionen aus der Grenzschicht, der Biosphäre, durch den Flugverkehr und durch Feuer. Entsprechend schwierig ist auch die Evaluierung von Modellen bzw. die Beurteilung der Abweichung von Modelldaten und Messdaten (z.B. Ehhalt 1992, Flatøy und Hov 1996). Ähnliches gilt für die Ozon- und Kohlenmonoxidkonzentrationen in der Tropopausenregion der Nordhemisphäre (vgl. Horowitz 2003).

Das globale Ozonmessnetz weist aufgrund zahlreicher Bodenstationen in der unteren Troposphäre eine hohe Datendichte auf. Die oberen Regionen der Troposphäre und die Tropopausenregion sind abgesehen von punktuellen Sondierungen durch Radiosondenaufstiege oder dem Einsatz spezieller Forschungsflugzeuge kaum erforscht. Satellitenmessgeräte können nicht durch hochliegende Cirrusbewölkung hindurchsehen und liefern gewöhnlich vertikal integrierte Spurenstoffsäulen oder haben eine schlechte Vertikalauflösung bzw. Genauigkeit in der Troposphäre (Thouret et al. 1998). Die Tropopausenregion ist als Grenzschicht zwischen der labil geschichteten Troposphäre und der stabil geschichteten Stratosphäre eine sehr klimawirksame Region, welche im Vorfeld der MOZAIC-Messungen strahlungsklimatisch und im Hinblick auf stratosphärisch-troposphärische Austauschprozesse kaum erforscht war (Marengo et al. 1998). Der Flugverkehr konzentriert sich in den mittleren Breiten vornehmlich auf diese Region, und sein Einfluss auf das Klima, z.B. die Auswirkung von Kondensstreifen auf die Zirrenbildung, sowie der Einfluss der Flugzeugemissionen auf das Ozon- und Stickoxidbudget etc., sind ungenügend untersucht (Marengo et al. 1998).

## 1. Einleitung

Zur Erforschung der Tropopausenregion im Hinblick auf die Verteilung der Treibhausgase Wasserdampf und Ozon wurde 1994 das EU-Projekt MOZAIC (Measurement of ozone, carbon monoxide, and nitrogen oxides by Airbus in-service aircraft) ins Leben gerufen. Als Messplattform dienen fünf Linienflugzeuge mehrerer europäischer Fluggesellschaften, deren Reiseflughöhe in den Mittelbreiten hinreichend genau in Tropopausenhöhe liegt.

Der MOZAIC-Datensatz bietet mit einer kontinuierlichen, mehrjährigen und mehrere Kontinente und Ozeane umspannenden Messreihe die Möglichkeit, die Spurenstoffverteilung von Ozon und Wasserdampf, seit 2001 auch von Stickoxiden und seit 2002 von Kohlenmonoxid, in der Troposphäre zu untersuchen. Damit bietet der Datensatz die Möglichkeit, unter klimageographischen Gesichtspunkten – d.h. die Interaktion zwischen Erdoberfläche und Atmosphäre beachtend – die Verteilung von Spurengasen durch Typisierung und Abgrenzung von Raumeinheiten zu charakterisieren.

In der vorliegenden Arbeit werden zunächst globale Verteilungen von Ozon, Stickoxiden und Kohlenmonoxid für die untere Stratosphäre und die obere Troposphäre in jahreszeitlicher Aufteilung betrachtet. Weiterhin werden Vertikalprofile für Ozon, relative Feuchte, Stickoxide und Kohlenmonoxid für mehr als 50 statistisch repräsentative Flughäfen analysiert. Zur Bewertung des Einflusses lokaler Emissionsquellen auf die regionale Hintergrundkonzentration dienen Wind- und Spurenstoffrosen von der Erdoberfläche bis in die freie Troposphäre. Die Jahressgänge der Spurenstoffe werden anhand ausgewählter Flughäfen veranschaulicht. Die Untersuchung basiert auf einer Charakterisierung der Flughäfen im Hinblick auf die Lage zur Stadt bzw. zu industriellen Agglomerationen, die umgebende Orographie, Küstennähe etc. sowie einer Einteilung in Klimazonen nach der Klassifikation von Köppen und Geiger. Zur Prüfung der Frage, inwieweit die Spurenstoffkonzentrationen nicht nur einem saisonalen Jahresgang unterliegen, sondern auch von Wetterlagen beeinflusst sein können, wird am Beispiel der Region Ostküste USA eine Wetterlagenklassifikation eingesetzt und die Änderung der Spurenstoffkonzentrationen in Abhängigkeit der Wetterlagen untersucht. Ziel ist die Charakterisierung von Spurenstoffkonzentrationen aufgrund von Zirkulationsmustern. Dies soll eine Möglichkeit der Klassifizierung darstellen, welche über die in den

## 1. Einleitung

Mittelbreiten geltenden Jahreszeiten Frühling, Sommer, Herbst und Winter hinausgeht und die regionalen geographischen Charakteristika mit einbezieht.

## 2. GRUNDLAGEN ZUR OZONCHEMIE UND ZUR ALLGEMEINEN ZIRKULATION DER ATMOSPHERE

### 2.1 EMISSIONEN VON SPURENSTOFFEN

Emissionen von Ozonvorläufersubstanzen haben in den letzten Jahren aufgrund des gestiegenen Verbrauches von fossilen Brennstoffen, erhöhter Biomasseverbrennung und intensiverer agrarwirtschaftlicher Aktivitäten einen starken Anstieg erfahren (Denman et al. 2007). Der unter anderem durch erhöhte Spurenstoffemissionen angetriebene Prozess des Klimawandels führt selbst wiederum zu verstärkten Emissionen beispielsweise von Stickoxiden durch die Zunahme von Gewittern und der damit verbundenen Anzahl an NO-produzierenden Blitzen (Denman et al. 2007). Die Konzentrationen und Verteilungen der Spurenstoffe Ozon, Kohlenmonoxid und Stickoxide variiert je nach geographischer Umgebung. Warneck (1999) gibt für Ozon ein Mischungsverhältnis von 15 bis 50 ppb an mit niedrigen Werten in äquatorialen Breiten und einem Anstieg in Richtung der Pole. Als Quelle spielt die photochemische Produktion mit  $1300 \text{ Tg yr}^{-1}$  die Hauptrolle.  $600 \text{ Tg yr}^{-1}$  werden aus der Stratosphäre eingetragen. Bei einer Lebensdauer von etwa zwei Monaten stellt der Verlust durch photochemische Reaktionen mit  $1300 \text{ Tg yr}^{-1}$  ebenfalls die wichtigste Senke für Ozon dar, gefolgt von der trockenen Deposition mit  $650 \text{ Tg yr}^{-1}$ . Die Konzentration von Kohlenmonoxid unterscheidet sich mit 0,2 ppm auf der Nordhemisphäre von südhemisphärischen Werten um 0,05 ppm. Als Quellen tragen mit  $440 \text{ Tg yr}^{-1}$  anthropogene Emissionen bei,  $770 \text{ Tg yr}^{-1}$  werden durch Biomasseverbrennung erzeugt. Durch die Oxidation von Methan gelangt der größte Anteil mit  $860 \text{ Tg yr}^{-1}$  in die Atmosphäre und durch die Oxidation natürlicher Kohlenstoffe weitere  $610 \text{ Tg yr}^{-1}$ . Die wichtigste Senke stellt die Reaktion mit dem Hydroxyl-(OH-)Radikal dar mit  $2400 \text{ Tg yr}^{-1}$ . Etwa  $100 \text{ Tg yr}^{-1}$  werden an die Stratosphäre abgegeben (Warneck 1999:29) und dort photochemisch umgesetzt (Seiler 1974). Von den Böden werden  $400 \text{ Tg yr}^{-1}$  aufgenommen. Die Lebensdauer beträgt etwa anderthalb Monate (Warneck 1999:25).

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

Mit einer Lebensdauer von rund zwei Tagen weisen die deutlich kurzlebigeren Stickoxide Stickstoffmonoxid und –dioxid quellenspezifische Verteilungsmuster auf. Somit finden sich in maritimen Luftmassen etwa 30 ppt; in kontinentalen, abgelegenen Gebieten 300 ppt und in Industrieräumen 5 ppb. Die niedrigsten Werte wurden in Alaska, Nordkanada und dem östlichen Pazifik gemessen mit Mischungsverhältnissen von 10 ppt (NO), 50 ppt (NO<sub>x</sub>) und 300 ppt (NO<sub>y</sub>). Vertikal nimmt NO in der freien Troposphäre auf 10 ppt ab und steigt in der oberen Troposphäre wieder auf 100 ppt an. Es ergibt sich das typische C-förmige Vertikalprofil (Schumann und Huntrieser 2007). Die Quellen von Stickoxiden in der oberen Troposphäre stellen Konvektion aus der Grenzschicht, Eintrag aus der Stratosphäre und in-situ Produktion durch Blitze und Flugverkehr dar (Schumann und Huntrieser 2007, Schlager et al. 1997). Schumann (1997) beziffert den globalen Beitrag von Flugzeugemissionen auf die Stickoxidbilanz aus anthropogenen Quellen auf 3 Prozent. In der oberen Troposphäre, besonders nördlich des 30. Breitengrades der Nordhemisphäre, tragen sie jedoch einen großen Anteil an den NO<sub>x</sub>-Konzentrationen (Schumann 1997). NO<sub>y</sub> zeigt keinen Trend in der Höhe (Emmons 1997). Eine Quelle stellt in erster Linie die Verbrennung fossiler Brennstoffe mit einem Eintrag von 21 Tg yr<sup>-1</sup> dar, gefolgt von 10 Tg yr<sup>-1</sup> durch Bodenemissionen und 8 Tgyr<sup>-1</sup> durch Biomasseverbrennung (Warneck 1999).

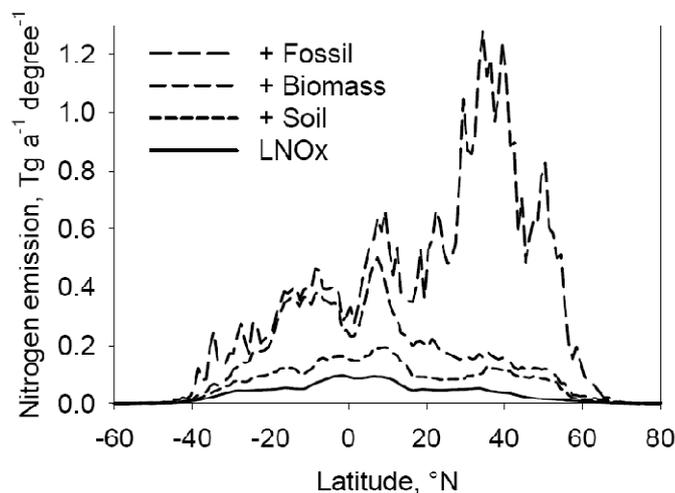
Blitze tragen einen Anteil von 2 bis 20 Tg yr<sup>-1</sup> bei, wobei die höchste Wahrscheinlichkeit im unteren Teil dieser Angabe liegt (DeCaria et al. 2005). Die Messung von blitzgeneriertem NO<sub>x</sub> (NO und NO<sub>2</sub>) ist äußerst kompliziert. Die Verteilung im Umfeld von Gewittern ist hochvariabel. Zunächst wurde unter Berücksichtigung physikalischer Eigenschaften von Blitzen angenommen, dass die NO-Produktion bei Blitzentladungen zwischen Wolken geringer ist als diejenige zwischen Wolke und Grund. Hohe NO-Konzentrationen würden in den unteren fünf Kilometern der Troposphäre gebildet und durch die intensive Konvektion bei Gewittern in die obere Troposphäre transportiert (Price et al. 1997). Jüngere Arbeiten fanden, dass Blitzentladungen zwischen Wolken nahezu die gleiche Menge NO produzieren als jene zwischen Wolke und Grund (DeCaria et al. 2000). Unter der Annahme, dass beide Blitzformen im Schnitt 460 Mol NO pro Blitz produzieren, was etwa mit satellitengemessenen NO-Säulen übereinstimmt, wurde mithilfe eines hochauflösenden (Wolkenskala) dreidimensionalen Chemie-Transport-Modells

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

gefunden, dass während eines Gewitters eine auf die NO-Freisetzung zurückzuführende zusätzliche Ozonproduktion von 10 ppb in der oberen Troposphäre stattfindet (DeCaria et al. 2005). Abb. 2.1 fasst die verschiedenen Stickstoffemissionsquellen zusammen.

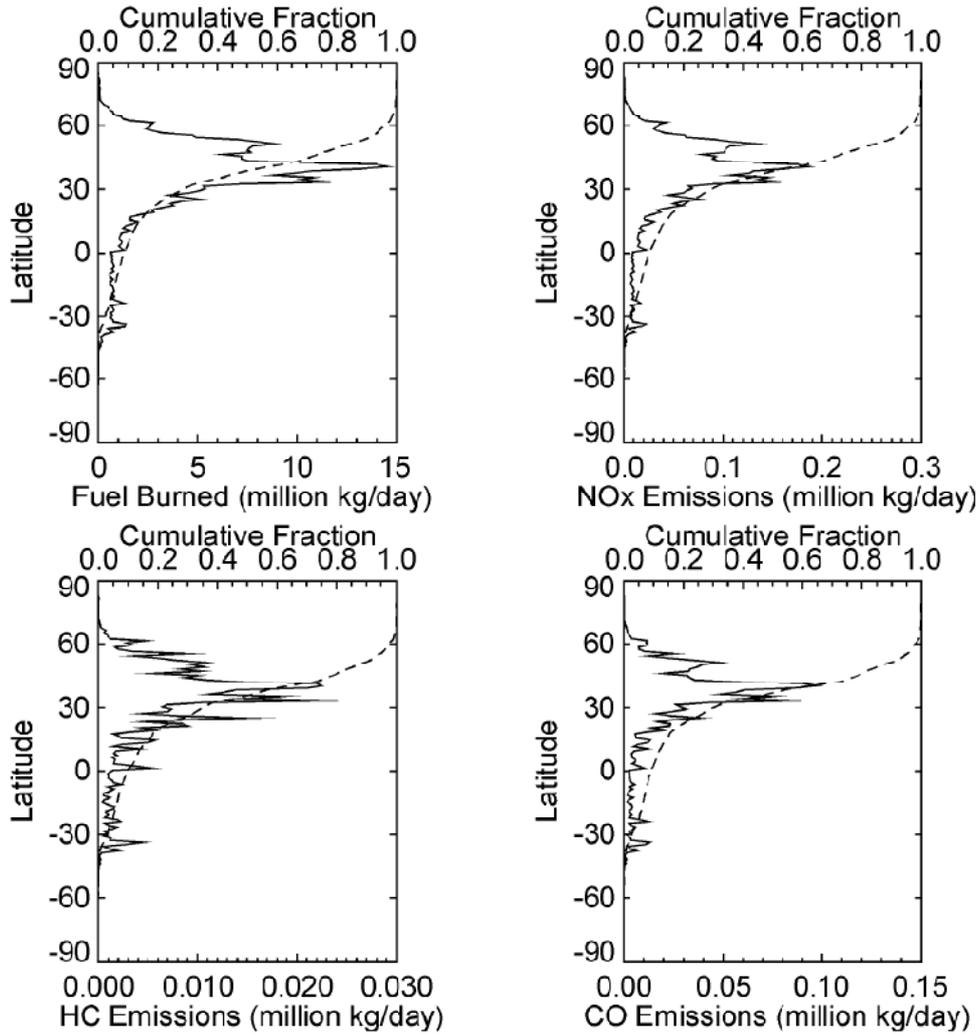
Als Senke wirkt die Oxidation der Stickoxide zu Salpetersäure  $\text{HNO}_3$  durch das OH-Radikal und Ozon. Auch Flugzeugemissionen stellen eine Quelle für Stickoxide in der Troposphäre dar, besonders in den hochfrequentierten Flugkorridoren. Die NASA erstellt regelmäßig mit den Scheduled Civil Aircraft Emission Inventories Emissionsdatenbanken zu Flugzeugemissionen. Abbildung 2.1 und 2.2 enthalten Daten von 1999. Insgesamt hat der Flugverkehr Auswirkungen auf die Konzentration aller Ozonvorläufersubstanzen  $\text{NO}_x$ , CO und Kohlenwasserstoffe. Die Angaben in Tabelle 2.1 beziffern dies für das Jahr 1999.

Als Senke wirkt die Oxidation der Stickoxide zu Salpetersäure  $\text{HNO}_3$  durch das OH-Radikal und Ozon. Die in MOZAIC gemessenen reaktiven Stickoxide  $\text{NO}_y$  setzen sich wie erwähnt aus verschiedenen Oxidationsprodukten von NO zusammen. In der unteren Stratosphäre bildet die Salpetersäure den größten Anteil, und die Summe von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{NO}_x$  beträgt etwa 90% des  $\text{NO}_y$ . In der oberen Troposphäre variiert die Summe von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{NO}_x$  zwischen 40 und 100 Prozent von  $\text{NO}_y$  (Neumann et al. 2001).



**Abbildung 2.1** Jährliche Stickstoffemissionsrate pro Breitengrad gegen die geographische Breite für das Jahr 2000. Emissionsdaten aus fossilen Brennstoffen basieren auf der EDGAR-Datenbank, Blitzemissionsdaten berechnet aus Satellitenmessungen (OTD), Biomasse und Bodenemissionen basierend auf GEIA-Datenbank. Quelle: Schumann und Huntrieser 2007

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre



**Abbildung 2.2** Verbrannter Kraftstoff und Emissionen (durchgezogene Linie) als Funktion der Breite für den Flugverkehr im Mai 1999. Die gestrichelte Linie zeigt den kumulativen Anteil. Quelle: Sutkus et al. 2001

**Tabelle 2.1** Prozent des global verbrannten Treibstoffes, emittierten NO<sub>x</sub> und der geflogenen Distanzen in ausgesuchten Regionen der Erde durch den regulären Flugverkehr im Mai 1999. Quelle: Sutkus et al. 2001

	US	Europe	North America	North Atlantic	North Pacific	China	Far East
Fuel burned	30%	14%	32%	4%	3%	4%	3%
NO <sub>x</sub>	28%	14%	30%	4%	3%	5%	4%
Distance	39%	16%	41%	3%	2%	4%	2%

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

**Tabelle 2.2** Verbrannter Treibstoff und Emissionen des regulären Flugverkehrs für jeden Monat des Jahres 1999. Quelle: Sutkus et al. 2001

Month	Fuel (kg/day)	NO <sub>x</sub> (kg/day)	HC (kg/day)	CO (kg/day)	Distance (km/day)
January	3.42E+08	4.49E+06	5.30E+05	1.87E+06	6.80E+07
February	3.40E+08	4.48E+06	5.24E+05	1.86E+06	6.82E+07
March	3.43E+08	4.52E+06	5.20E+05	1.86E+06	6.88E+07
April	3.45E+08	4.54E+06	5.12E+05	1.85E+06	6.90E+07
May	3.47E+08	4.58E+06	5.14E+05	1.87E+06	7.01E+07
June	3.57E+08	4.70E+06	5.24E+05	1.90E+06	7.21E+07
July	3.61E+08	4.75E+06	5.28E+05	1.92E+06	7.27E+07
August	3.64E+08	4.80E+06	5.36E+05	1.94E+06	7.36E+07
September	3.57E+08	4.70E+06	5.23E+05	1.91E+06	7.26E+07
October	3.54E+08	4.66E+06	5.12E+05	1.88E+06	7.21E+07
November	3.46E+08	4.58E+06	4.90E+05	1.82E+06	7.02E+07
December	3.50E+08	4.64E+06	4.93E+05	1.83E+06	7.10E+07
<b>Total</b>	1.28E+11 kg/year	1.69E+09 kg/year	1.89E+08 kg/year	6.85E+08 kg/year	2.58E+10 km/year

Tabelle 2.4 enthält eine Übersicht über die Lebensdauer, das Vorkommen in der Troposphäre und die globale Quellstärke der an der Ozonproduktion beteiligten Substanzen Kohlenmonoxid, Methan, Stickoxide und Kohlenwasserstoffe. Eine Reduktion der industriellen Emissionen von CO (500 Tg/yr, basierend auf Kanakidou und Crutzen 1999) um 50 Prozent würde einen Anstieg des OH-Radikals um 3.5 Prozent führen, welches den photochemischen Abbau des Treibhausgases Methan verstärken würde (Abhängigkeit vgl. Kap. 2.2) (Kanakidou und Crutzen 1999).

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

**Tabelle 2.3** Der Beitrag biogener Emissionen aus Böden (oben) und Pflanzen (unten) zu den globalen Kreisläufen verschiedener Oxidantien-Vorläufergase (Meixner et al. 2000)

Spurengas	Mischungsverhältnis (ppbv)	Typische Lebenszeit (Tage)	Gesamtbudget (Tg a <sup>-1</sup> )	Jährlicher Anstieg (%)	Prozentualer Anteil der Böden an den Quellen (%)	Prozentualer Anteil der Böden an den Senken (%)
CO	70-100	100	2600	1.0	1	15
CH <sub>4</sub>	1700	4000	540	< 0.8	60	5
N <sub>2</sub> O	310	60000	15	0.2-0.3	70	?
NO	< 0.1-20	1	60	?	20	?

Spurengas	Mischungsverhältnis (ppbv)	Typische Lebenszeit (Tage)	Gesamtbudget (Tg a <sup>-1</sup> )	Jährlicher Anstieg (%)	Prozentualer Anteil der Pflanzen an den Quellen (%)	Prozentualer Anteil der Pflanzen an den Senken (%)
CO	70-170	100	2600	1.0	6	0
VOCs	0.1-100	0.004-2	900-1400	?	> 80	< 1?
NO	<0.1-20	1	60	?	< 4	?

**Tabelle 2.4** Lebensdauer, mittleres troposphärisches Mischungsverhältnis und Quellstärke für CO, CH<sub>4</sub>, NO<sub>x</sub>, VOC, O<sub>3</sub>. Zusammengestellt nach Ehhalt 1999 und Fabian 1992

	CO	CH <sub>4</sub>	NO <sub>x</sub>	VOC	O <sub>3</sub>
Lebensdauer	1.5 Monate	7.5 Jahre	1.5 Tage	Stunden (Isoprene) Tage (Alkene) Wochen - Monate (Alkane)	Einige Wochen
Mittleres troposphärisches Mischungsverhältnis	200 ppb	1750 ppb	0.01-5 ppb	10-100 ppb	30-50 ppb
Globale Quellstärke	2800 Tg/yr	530 Tg/yr	45 Tg/yr	1400 Tg/yr	

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

### 2.2 DIE PHOTOCHEMIE DER GASE IN DER TROPOSPHÄRE

Die natürlich und anthropogen emittierten Gase werden in der Atmosphäre wieder abgebaut, da die Konzentrationsraten nicht der Höhe der Emissionsraten entsprechen.

Der Abbauprozess vor allem von Methan und Kohlenmonoxid beruht auf Reaktionen mit dem Hydroxylradikal, welches durch Spaltung von Ozon- und Wasserdampfmolekülen gebildet wird (Graedel, Crutzen 1994:164).

Der Hauptanteil des Ozons befindet sich in der Stratosphäre – in einer Höhe von 15 bis 30 km. Dort wird es durch die Photodissoziation von molekularem Sauerstoff gebildet, wozu Wellenlängen unterhalb 242 nm benötigt werden (Graedel, Crutzen 1994:151). Dort wird das Ozonmolekül, welches Strahlung im Wellenlängenbereich zwischen 240 und 320 nm absorbiert, photodissoziiert und schließlich wieder zu zwei Sauerstoffmolekülen rekombiniert. Dieser Mechanismus wurde 1930 identifiziert und nach seinem Entdecker als *Chapman Mechanism* bezeichnet (Seinfeld und Pandis 2006:143). Die Stratosphäre stellt auch eine Quelle für  $\text{NO}_x$  dar. Es wird aus dem langlebigen, in der Stratosphäre vorkommenden  $\text{N}_2\text{O}$  gebildet (Seinfeld und Pandis 2006:151).



Da diese Wellenlängen im Bereich der Troposphäre nicht vorkommen, sondern diese nur Strahlung mit Wellenlängen oberhalb von 290 nm empfängt, wobei der ultraviolette Anteil zwischen 290 und 340 nm zusätzlich aufgrund der Absorption in der Stratosphäre verringert ist (Fabian 1992:63), scheidet dieser Prozess für die Entstehung des troposphärischen Ozons aus.

Mitte der vierziger Jahre des 20. Jahrhunderts gewann erstmals Ozon als schädlicher Photooxidant die wissenschaftliche Aufmerksamkeit, als man im Umkreis von Los Angeles, wo häufig photochemischer Smog auftritt, starke Pflanzenschäden durch Ozon – einer der Hauptbestandteile – nachweisen konnte. Schließlich wurde im Jahr 1958 der Reaktionsmechanismus, an dem als Vorläufersubstanzen Nichtmethan-Kohlenwasserstoffe (NMHC) und Stickoxide ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ) beteiligt

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

sind, durch Arie Haagen-Smit am California Institute of Technology folgendermaßen identifiziert (Haagen-Smit 1958, Graedel und Crutzen 1994:160):



Da  $\text{NO}_2$  durch Strahlung mit Wellenlängen unter 410 nm, welche die Troposphäre erreichen, aufgespalten wird, erfolgt nachstehende Reaktion:



Das entstandene höchst reaktive Sauerstoffatom im Triplett-Zustand reagiert mit molekularem Sauerstoff schließlich zu Ozon [5]. Ein Stoßpartner M fungiert als drittes Molekül in der Reaktion, um die energiereiche Reaktion zu stabilisieren und die Dissoziation zurück in die Reaktanten zu verhindern. Das Molekül wird mit dem Symbol M gekennzeichnet und nicht spezifiziert (Finlayson-Pitts 1999:130).

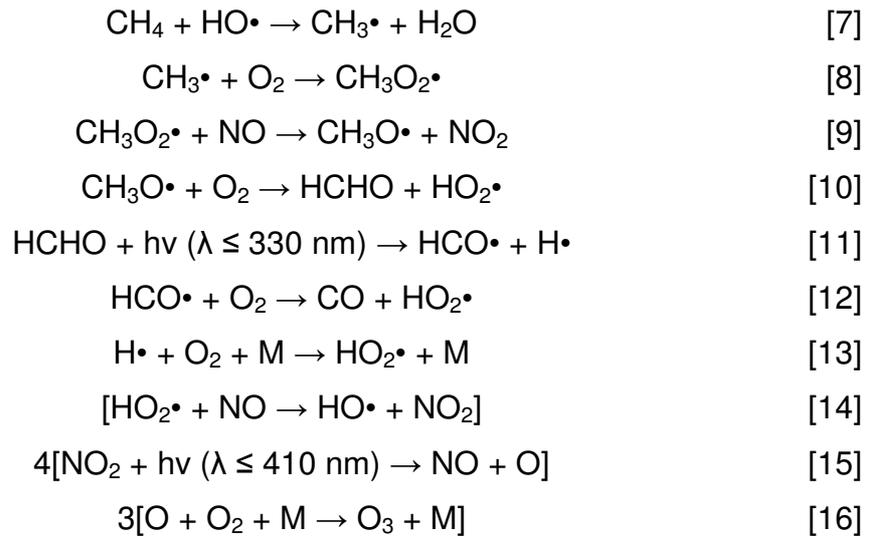
Das Ozonmolekül reagiert mit Stickstoffmonoxid schließlich wieder zu Sauerstoff und Stickstoffdioxid (Graedel, Crutzen 1994:161):



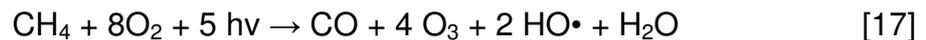
Diese drei rasch ablaufenden Reaktionen bedingen das photostationäre Gleichgewicht zwischen den Konzentrationen von  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$ , welches schließlich über die Ozonkonzentration bestimmt. Das Gleichgewicht zeichnet sich dadurch aus, dass sich die Konzentrationen zeitlich nicht mehr verändern und  $d[\text{NO}]/dt = 0$  ist (Staehelin et al. in Guderian 2000:223).

1973 wurde von Crutzen in Stockholm nachgewiesen, dass durch Oxidationszyklen von Methan und Kohlenmonoxid in Abhängigkeit des Vorkommens der Katalysatoren  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  eine Ozonproduktion auch außerhalb starker Emissionsquellen stattfinden kann (Crutzen 1973). Diese Reaktionskette wird durch den Angriff eines Hydroxylradikals auf Methan eingeleitet:

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre



Der Punkt bezeichnet ein einzelnes Elektron, und damit stellt das Molekül ein Radikal dar. Daraus resultiert zunächst eine Nettobilanz von:

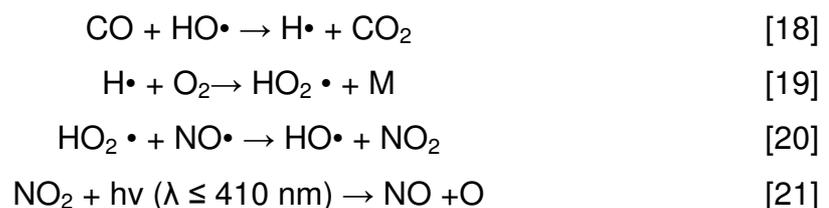


also eine Produktion von vier Ozonmolekülen und zwei Hydroxylradikalen für jedes  $\text{CH}_4$ -Molekül, welches zu CO oxidiert wird. Formaldehyd (HCHO) resultiert als Zwischenprodukt (Graedel, Crutzen 1994:163).

Nun beginnt der eigentliche Einfluss der  $\text{NO}_x$ -Radikale: Das Kohlenmonoxid – entstanden aus der Methanoxidationskette oder aus Verbrennung fossiler Brennstoffe – kann nun selbst mit dem Hydroxylradikal reagieren.

Dieser Oxidationskreislauf und besonders sein Ergebnis hängen von der Stickoxidkonzentration ab. Hier wird entschieden, ob troposphärisches Ozon gebildet oder zerstört wird, bzw. in welchem Verhältnis die drei Substanzen NO,  $\text{NO}_2$  und  $\text{O}_3$  zueinander stehen.

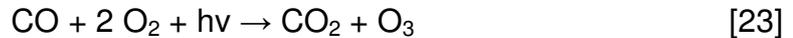
Wird Ozon gebildet, dann müssen für die Oxidation von Kohlenmonoxid Reaktionen mit Hilfe der Katalysatormoleküle NO und  $\text{NO}_2$  stattfinden. Dies läuft wie folgt ab:



## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre



Das Nettoergebnis ist dann:



Sind die  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen zu niedrig, dann erfolgt bei der Kohlenmonoxid-oxidation eine Zerstörung von Ozon:



In diesem Fall beträgt die Nettobilanz:



Diese Reaktionskette läuft sehr schnell ab. Die gegenseitige Konvertierung von OH zu  $\text{HO}_2$  und umgekehrt sowie die Hin- und Rückreaktion zwischen NO und  $\text{NO}_2$  erfolgen innerhalb von Sekunden. Daher werden beide oft unter der Bezeichnung  $\text{HO}_x$  bzw.  $\text{NO}_x$  zusammengefasst (Ehhalt 1999:64).

Der Wendepunkt zwischen Reaktionskette [18] und [24], d.h. der Punkt, an dem das System von  $\text{NO}_x$ -limitiert zu  $\text{NO}_x$ -gesättigt umschlägt, liegt bei einer NO-Konzentration, wo  $\delta P_{\text{O}_3}/\delta[\text{NO}] = 0$  (Seinfeld und Pandis 2006:217).

Wenn das Verhältnis von Kohlenmonoxid zu Ozon 1:4000 übersteigt, also bei Volumenmischungsverhältnissen zwischen 5 und  $10 \times 10^{-12}$  in der unteren Troposphäre, dann ist erstere der beiden Reaktionen dominant, weil deren Reaktionsgeschwindigkeitskonstante etwa 4000 Mal größer ist als die ozonzerstörende Reaktion (Graedel, Crutzen 1994:163).

$\text{NO}$ -,  $\text{CO}$ - und  $\text{CH}_4$  – Emissionen sind aufgrund anthropogener Aktivitäten sehr stark angestiegen, und da  $\text{CH}_4$  und  $\text{CO}$  im troposphärischen „Hintergrund“ die Hauptreaktionspartner des Hydroxylradikals darstellen, sind oben genannte Bilanzen

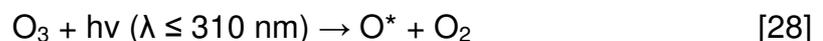
## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

eine wichtige Information für die Abläufe der photochemischen Prozesse in der vom Klimawandel veränderten „Hintergrund“-Troposphäre. (Graedel, Crutzen 1994:164). Methan hat einen großen Einfluss auf die Ozonchemie. In NO-armen Regionen findet ein Nettoverlust von drei bis vier Hydroxylradikalen ( $\text{HO}\cdot$  und  $\text{HO}_2\cdot$ ) statt, in NO-reichen Regionen hingegen resultiert ein Nettogewinn von 0,5 bis 1,0  $\text{HO}_x$ -Radikalen sowie drei bis vier Ozonmolekülen pro oxidiertem Methanmolekül (Graedel, Crutzen 1994:164).

Aufgrund der kurzen Lebensdauer des  $\text{NO}_x$ -Radikals von nur ein paar Tagen verringert sich die Konzentration beim Transport um den Faktor 10 pro 1000 km. Somit treten die hohen zweistelligen Konzentrationswerte hauptsächlich in der Nähe der anthropogenen Quellgebiete auf, in den Reinluftgebieten sinkt ihr Wert sehr rasch ab, was die dort erhöhte Ozonkonzentration nach den vorangegangenen Darstellungen erklärt.

Da der Kreislauf durch die Rückbildung von Ozon keine Netto-Produktion von Ozon bewirkt, muss diese dann stattfinden, wenn die Konvertierung von NO zu  $\text{NO}_2$  durch die Reaktion mit einem Stoff, der nicht Ozon ist, erfolgt. Diese Aufgabe erfüllt das Hydroxylradikal, der Mechanismus wird nachfolgend beschrieben.

Dem Ozon kommt eine bedeutende Rolle in der Troposphäre zu, obwohl sich dort nur etwa 10 Prozent des atmosphärischen Gesamtanteils befinden (Graedel, Crutzen 1994:165). Seine Aufspaltung durch Strahlungseinwirkung mit weniger als 310 nm leitet die Bildung des Hydroxylradikals ein. Zunächst wird das Ozonmolekül in ein Sauerstoffmolekül und ein Sauerstoffatom in einem angeregten Elektronenenergiezustand (\*) gespalten, welches das sehr stabile Wassermolekül in zwei Hydroxylradikale aufbricht. Folgende Reaktionen laufen ab:



Als Fragment des stabilen Wassermoleküls hat das Hydroxylmolekül das Bestreben, wieder zu diesem zu rekombinieren. Zu diesem Zweck übernimmt es ein Wasserstoffatom von einem in der Nähe befindlichen Molekül. Diese kommen in der Regel sehr häufig vor, und durch die Reaktion mit OH wird ihre Reaktivität, ihre

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

Wasserlöslichkeit und somit die Auswaschgeschwindigkeit aus der Atmosphäre erhöht (Graedel, Crutzen 1994:161).

Dies geschieht folgendermaßen: durch die Reaktion mit einem Kohlenwasserstoffmolekül entsteht ein angeregtes organisches Molekül  $R\cdot$ , welches mit Sauerstoff zu  $RO_2\cdot$  reagiert.



Dieses reagiert mit Stickstoffmonoxid zu  $NO_2$  und  $RO\cdot$ .



Durch diese Oxidation von Stickstoffmonoxid zu Stickstoffdioxid, ohne dass dabei Ozon zerstört wird, wie es bei Reaktion [6] der Fall ist.

Damit steigen die Ozonkonzentrationen stark an, wenn eine genügende Menge an  $NO_x$  und NMHC gegeben ist. Die Reaktionen mit dem in der Troposphäre vergleichsweise reaktionsträgen Sauerstoff laufen zu langsam ab, und die Aufnahme von emittierten Spurengasen in Wolkenwasser erfolgt sehr langsam. Folglich erfolgt die Auswaschung der Gase – hauptsächlich Kohlenwasserstoffe - durch das OH-Radikal. Abschließend sind in Abb. 2.3 die wichtigsten Reaktionen der Photooxidantienbildung dargestellt:



## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

### 2.3 ALLGEMEINE ZIRKULATION DER ATMOSPHERE

Dynamische Transportprozesse sorgen für die Durchmischung der Atmosphäre. Die in dieser Arbeit betrachteten Spurengase unterliegen mit einer Lebensdauer von einigen Tagen bis mehreren Monaten Transportprozessen auf der Meso- und Makroskala sowie auf der globalen Skala. Daher sollen im Folgenden kurz einige Grundlagen zum Wind und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre dargestellt werden.

Voraussetzung für jede Form von Luftbewegung ist die Verteilung des Luftdrucks. Dieser ist die Kraft, die senkrecht auf die Oberflächen einer Luftsäule wirkt. Diese Kraft ist das Produkt aus der Masse der Luftmoleküle und der Schwerebeschleunigung durch die Erdanziehungskraft. Die Masse und damit die Luftdichte nehmen mit zunehmender Höhe ab, ausgedrückt in der hydrostatischen Grundgleichung

$$\frac{\delta p}{\delta z} = -\rho * g \quad [32]$$

Darin sind  $\delta p/\delta z$  = Luftdruckabnahme im Höhenintervall  $\delta z$ ,  $\rho$  = Luftdichte,  $g$  = Schwerebeschleunigung. Da mit zunehmender Höhe die Dichte und damit der Druck auf die Luftsäule geringer werden, erfolgt die Luftdruckabnahme nicht linear, sondern exponentiell (Lauer und Bendix 2002:152). Zudem kommt eine temperaturbedingte unterschiedlich starke Abnahme des Luftdrucks mit der Höhe. Bei erwärmten Luftsäulen erfolgt durch die Zunahme der Brown'schen Molekularbewegung eine vertikale Volumenausdehnung. Dies bedeutet, dass vertikale Luftdruckabnahme in warmen Luftsäulen langsamer vonstatten geht als in kalten Luftsäulen. Als Konsequenz davon weisen die Isobarenflächen ein Gefälle vom hohen zum tiefen Druck hin auf. Dieses Druckgefälle auf horizontaler Ebene wird als Druckgradient bezeichnet und ist definiert als  $1/\sigma * dp/dn$ . Der Gradient steigt mit zunehmender Höhe an, da  $\Delta p_{z2} > \Delta p_{z1}$  gilt (Lauer und Bendix 2002:155).

Dieses Phänomen tritt sowohl kleinräumig als Konsequenz unterschiedlicher Wärmeleitfähigkeit und Energiespeicherfähigkeiten verschiedener Erdoberflächen auf, als auch großräumig in Form von unterschiedlichem Strahlungseintrag auf der Erde

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

aufgrund der Schiefe der Ekliptik. In beiden Fällen entstehen unter verschiedenen Voraussetzungen Luftbewegungen als Folge der Luftdruck-unterschiede. Der horizontale Luftdruckgradient übt eine bewegungseinleitende Kraft vom hohen zum tiefen Druck senkrecht zu den Isobaren aus (Weischet 2002:138). Die zum tiefen Druck strömende Luft in den oberen Niveaus der Hochdruckseite wird durch nachströmende Luft vom Boden ausgeglichen. Eine ähnliche Vertikalverlagerung zum Massenausgleich erfolgt auf der Tiefdruckseite, wo die Luft nach unten verlagert wird. Am Boden entsteht dort ein Massenüberschussgebiet, welches zum Ausgleich des Bodentiefs im Hochdruckgebiet wiederum eine horizontale Strömung einleitet. Auf kleinräumiger Skala entsteht somit eine direkte thermische Zirkulation. Der Luftdruckausgleich erfolgt auf direktem Weg senkrecht zu den Isobaren. Dieser reibungsfreie Wind wird als Geostrophischer Wind (Weischet 2002:138) bezeichnet. Der Grund für die Druckunterschiede auf engem Raum an der Erdoberfläche liegt in der unterschiedlichen spezifischen Wärme der Oberflächenmaterialien. Wasser hat mit 4,2 (Ws/g K) eine sehr hohe spezifische Wärme im Vergleich zu Gestein oder trockenem Boden, deren Werte unter 1 liegen (Häckel 1999:66). Folglich erwärmen sich Wasserflächen bei Einstrahlung langsamer als Landflächen, nachts kühlen sie langsamer ab. Daher stellt sich an Küstengebieten häufig oben beschriebene Zirkulation ein, als Land-See-Wind bezeichnet. Nachts bei Ausstrahlung kehrt sich das System um. Der Berg-Talwind beruht ebenfalls auf diesem Prinzip. Im Tal erwärmen sich die Luftmassen schneller als im Flachland, dann weht der Wind das Tal hinauf, nachts weht er das Tal hinunter (Häckel 1999:238).

Auf globaler Skala funktioniert der Luftdruckausgleich nach dem gleichen Prinzip, allerdings wirken aufgrund der großen Ausdehnung zusätzliche Kräfte auf den Gradientwind ein und verändern seine Richtung. Neben der Reibungs- und Fliehkraft hat die Corioliskraft den größten Einfluss. Sie bildet einen rechten Winkel zu jedem Objekt mit einer Bewegungsrichtung auf der rotierenden Erde. Damit wirkt sie isobarenparallel und lenkt den Gradientwind ab. Dieser legt eine neue Bewegungsrichtung fest, worauf wieder die Corioliskraft rechtwinklig einwirkt. Dies pendelt sich schließlich solange ein, bis sich die Gradientkraft in Richtung vom hohen zum tiefen Druck und Corioliskraft – im rechten Winkel zur resultierenden Strömung – genau die Waage halten. Dann verläuft die Strömungsrichtung im rechten Winkel zur Gradientkraft und im rechten Winkel zur Corioliskraft, also isobarenparallel. Damit

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

ist auf großer Skala ein beschleunigungsfreier, geostrophische Wind erreicht, und die Corioliskraft  $C$  ist gleich der negativen Gradientkraft  $-G$ , die in Richtung des Luftdruckgefälles weist (Häckel 1999:245). Die Windgeschwindigkeit  $v$  ist proportional dem Druckgradienten. Für die Corioliskraft  $C$  gilt

$$C = 2 \cdot \rho \cdot \omega \cdot \sin(\varphi) \cdot v \quad [33]$$

mit  $\rho$  = der Luftdichte,  $\omega$  die Winkelgeschwindigkeit der Erdrotation,  $\varphi$  der geographischen Breite und  $v$  = der Geschwindigkeit des Luftpaketes. Die geographische Breite beeinflusst die Wirkung der Corioliskraft, da sich mit abnehmender Breite die Entfernung zur Rotationsachse der Erde pro Grad Breitenänderung immer weniger ändert. Am Äquator ist sie Null, hier hat die Corioliskraft keine Wirkung (Häckel 1999:245).

Die Allgemeine Zirkulation der Atmosphäre, die sich auf globaler Skala einstellt, beschreibt nun diesen mittleren Zirkulationsmechanismus in der Lufthülle der Erde, der sich, aufgrund der unterschiedlichen solaren Energiezufuhr zum großräumigen Ausgleich von Masse, Wärme und Bewegungsenergie unter Einwirkung der Gradientkraft, der Coriolis-, Zentrifugal-, Reibungs- und Schwerkraft einstellt (Weischet 2002:226, Lauer und Bendix 2002:167).

Die horizontale Verteilung der Strahlungsbilanz an der Erdoberfläche unterliegt aufgrund der Kugelgestalt der Erde dem Lambertschen Gesetz, welches besagt, dass der Strahlungsstrom vom Einfallswinkel abhängt.

$$J = \sin\beta \cdot J_0 \quad [34]$$

mit  $J$  = dem Strahlungsstrom,  $\beta$  = dem Einfallswinkel und  $J_0$  = dem Strahlungseintrag, der auf eine zur Ausbreitungsrichtung stehende Fläche trifft (Häckel 1999:146). Die größte Einstrahlung wird am Äquator erreicht, allerdings ist die Globalstrahlung als Summe von direkter und diffuser Einstrahlung mit bis zu  $280 \text{ W/m}^2$  in den subtropischen-randtropischen Wüsten am höchsten. Die hohe Bewölkung in den inneren Tropen hindert die Einstrahlung und erhöht die Reflexion der Atmosphäre (Lauer und Bendix 2002:56).

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

Die Strahlungsbilanz ist global betrachtet ausgeglichen, aber in einzelnen Klimazonen positiv oder negativ. Beispielsweise ist sie über der Sahara trotz höchster Strahlungseinnahmewerte negativ, weil die nächtliche langwellige Ausstrahlung ungehindert in den Weltraum entweicht. Da die Sonnenstrahlung polwärts mit abnehmender Sonnenhöhe abnimmt und die Extinktion mit längerem Weg durch die Atmosphäre zunimmt, wird die Strahlungsbilanz ab etwa 40° Breite negativ (Lauer und Bendix 2002:56). Nach dem Massenerhaltungsgesetz und der Kontinuitäts-gleichung muss ein Transport von fühlbarer und latenter Wärme von den hohen zu den niederen Breiten erfolgen (Lauer und Bendix 2006:156). Da der Luftdruck in kalter Luft mit der Höhe schneller abnimmt als in warmer Luft, herrscht über den Tropen höherer Luftdruck als über den Polargebieten, und es ergibt sich ein horizontales Gefälle vom Äquator in Richtung Pole. Der größte Teil des Strahlungsenergie- und damit des Temperaturgefälles zwischen den hohen Einnahmewerten der Tropen und den vielfach kleineren der Polargebiete ist auf die Breitenzone 30-50°, die planetarische Frontalzone jeder Hemisphäre konzentriert (Weischet 2002:227). In den höheren Schichten der Atmosphäre ist ein durchgehendes Luftdruckgefälle von den Tropen zu den Polargebieten ausgebildet. Die größten meridionalen Luftdruckgradienten befinden sich in den Mittelbreiten zwischen 30° und 50° und dort von den unteren zu den oberen Troposphärenschichten zunehmend. Da oberhalb der Tropopause in der unteren Stratosphäre eine Umkehr des meridionalen Temperaturgefälles eintritt, muss die Schicht größten Druckgefälles in der oberen Troposphäre dicht unterhalb der Tropopause liegen. Folglich ist dies die Zone der stärksten Luftbewegung. Unter Einfluss der Corioliskraft ist in diesem Bereich ein Westwindband auf beiden Hemisphären ausgeprägt. In der Höhenzone direkt unterhalb der Tropopause werden die größten Windgeschwindigkeiten erreicht, die Starkwindbänder werden als Jetstream bezeichnet (Häckel 1999:277). Da der geostrophische Wind isobarenparallel und damit im Mittel breitenparallel weht, findet kaum Austausch zwischen hohem und tiefen Druck statt. Folglich werden der Luftdruckgradient und die Windstärke in der westlichen Höhenströmung, der Zonalzirkulation, immer stärker, bis das System instabil wird. Es folgt ein Übergang zu großräumigen Wellen mit meridionalen Amplituden. Das geschieht bei Überschreiten des meridionalen Temperaturgradienten von 6K/1000 km in 45° Breite im 500 hPa-Niveau. Dann geht

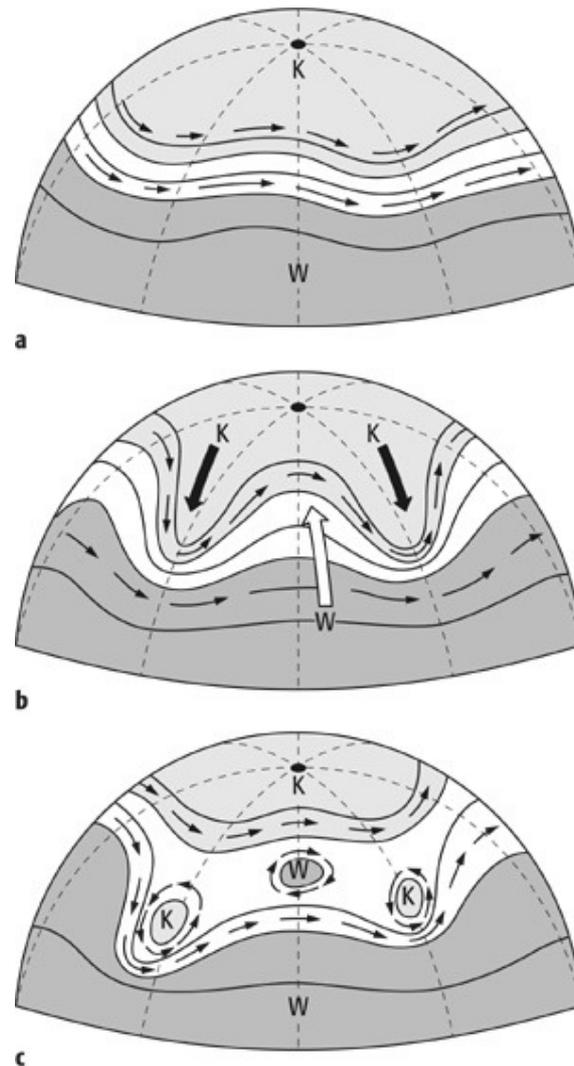
## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

die Zonalzirkulation in eine Wellenzirkulation über. Die Wellen bewegen sich in einer Geschwindigkeit von einigen 100 km pro Tag fort (Weischet 2002:227).

In der hohen Westwinddrift wird der Wind aus der isobarenparallelen Richtung herausgedrängt. Er weht dann quer zu den Isobaren. Dadurch wird das Luftdruckfeld gestört. Dort, wo Luft abgeführt wird, sinkt der Luftdruck, als Divergenz bezeichnet. Wo Luft hintransportiert wird, steigt er, als Konvergenz bezeichnet (Häckel 1999:263). Auf diese Weise entstehen die Hoch- und Tiefdruckgebiete, die den Witterungsablauf in den Mittelbreiten charakteristisch prägen. Durch das Zusammendrängen der Isobaren im Konvergenzbereich erhöht sich die Gradientkraft, die Geschwindigkeit des Luftpaketes bleibt zurück. Dadurch überwiegt die Gradientkraft über der Corioliskraft, und das Luftpaket wird nach links, polwärts, aus seiner Bahn gedrängt. Dadurch gelangt tropische Warmluft in Richtung zum Pol (Häckel 1999:263). Umgekehrt bei einem Auseinanderdriften der Isobaren im Divergenzbereich verringert sich die Windgeschwindigkeit, die Corioliskraft überwiegt, und das Luftpaket wird mit höherem Drehimpuls in Richtung zum Äquator abgelenkt. Damit gelangt Polarluft äquatorwärts (Abb. 2.4).

Über dem Konvergenzniveau in der Höhe wird die Tropopause nach oben aufgewölbt. Unterhalb des Divergenzniveaus wird eine absinkende Luftbewegung ausgeprägt, die sich in einem Bodenhoch niederschlägt. Dieser Umstand lässt sich in Kapitel 4 anhand der als Tropopausenmarkierung geltenden Ozonkonzentrationen unter Hochdruckeinfluss am Boden gut darstellen. Über der Divergenzzone wird die Tropopause abgesenkt (Häckel 1999:264). Dieses Absinken ist eine Folge des Ansaugens von Luft aus den hohen Troposphärenschichten, um das Massendefizit auszugleichen. Das Ansaugen setzt sich bis zur Erdoberfläche fort, wo unter dem Einfluss der Corioliskraft ein Bodentief entsteht. Die Luft kann unter diesem Einfluss nicht in das Sogzentrum einströmen, sondern wird rechts davon vorbeigelenkt. Es bildet sich auf der Nordhalbkugel eine zyklonale Zirkulation – gegen den Uhrzeigersinn – aus (Häckel 1999:265). Auch das Bodenhoch unterliegt dem Einfluss der Corioliskraft, die Divergenz der Luftmassen vom Druckzentrum weg wird durch die Umlenkung im Uhrzeigersinn auf der Nordhalbkugel abgelenkt.

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre



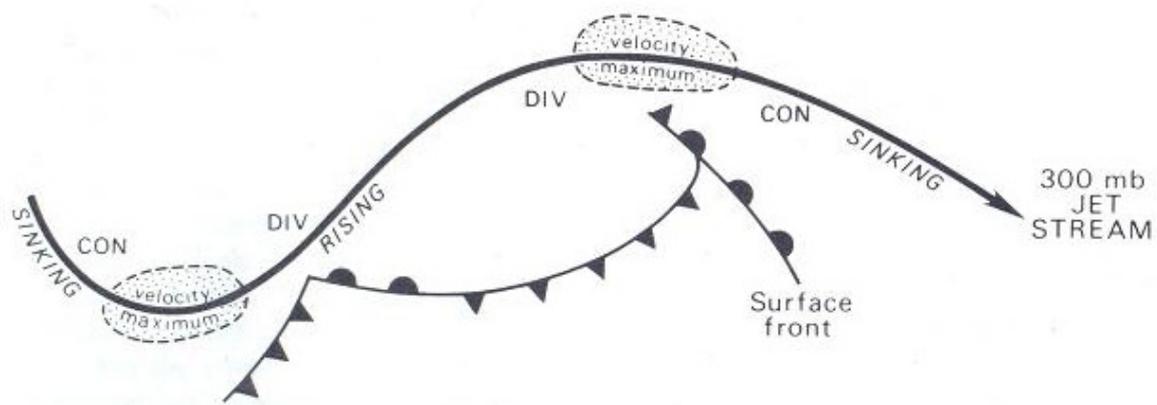
**Abbildung 2.4** Übergang der Zonal- in die Wellenzirkulation und Entstehung von Kaltlufttropfen und Warmluftinseln aus Spektrum der Wissenschaft Verlagsgesellschaft mbH (01.11.2008) Lexika, atmosphärische Zirkulation, barokline Wellen URL: <http://www.wissenschaft-online.de/abo/lexikon/geogr/553>

Da ein Tief an der Grenze zwischen polarer Kaltluft und tropischer Warmluft entsteht, sind jeweils polwärts drängende Warmfronten und äquatorwärts drängende Kaltfronten ausgebildet. Die Kaltfronten aus polaren Breiten haben, wie oben erläutert, einen höheren Drehimpuls. Daher ist ihre Geschwindigkeit höher im wandernden Tiefdrucksystem, sie holen die Warmfronten ein. Dieser Vorgang wird als Okklusion bezeichnet. Abb. 2.5 verdeutlicht dies.

Wichtig in diesem Zusammenhang auch für die Durchmischung der Spurenstoffe sind die Schichtungsverhältnisse. Vor der Kaltfront ist die Atmosphäre labil

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

geschichtet, der Luftdruck sinkt immer weiter ab. Nach dem Durchzug der Kaltfront steigt der Luftdruck wieder sprunghaft an (Häckel 1999:267). Als Begleiterscheinung treten an Warmfronten Aufgleitniederschläge auf, die als „Nieselregen“ aus Stratusbewölkung auftreten. An Kaltfronten fallen konvektive Starkniederschläge. Dies hat ebenfalls einen Einfluss auf die Verteilung von Spurengasen. Die Stickoxide, die in Form von  $\text{NO}_y$  im MOZAIC-Datensatz erfasst wurden, bestehen zu einem großen Anteil aus Salpetersäure, welche wasserlöslich ist und von Niederschlägen ausgewaschen wird (Seinfeld und Pandis 2006:37). In Abb. 2.6 sind die Stadien beim Durchzug einer Zyklone im Überblick dargestellt.



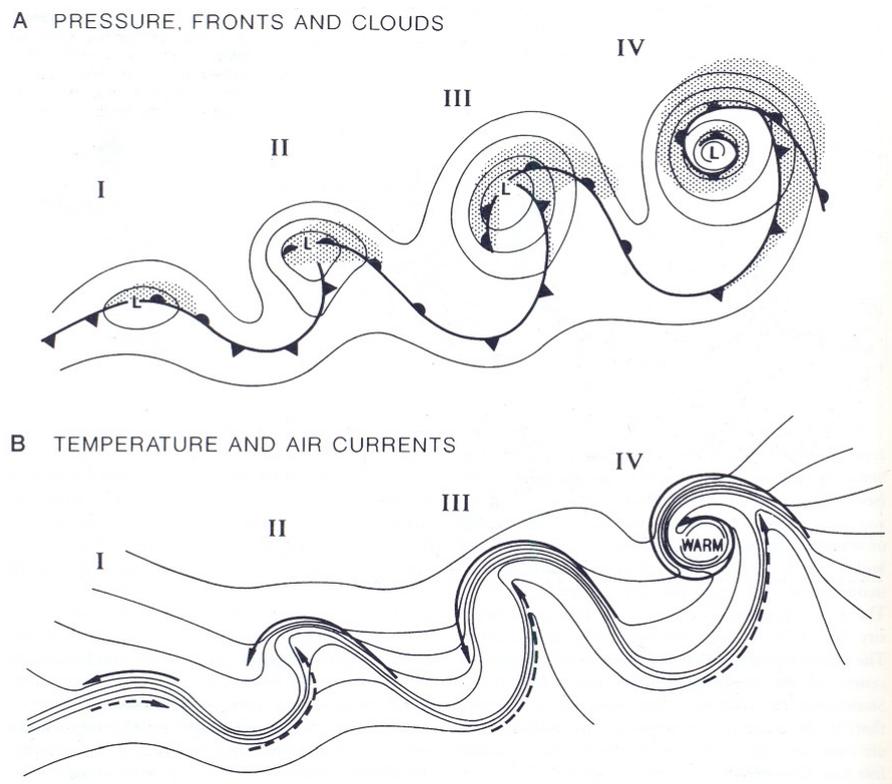
**Abbildung 2.5** Entstehung außertropischer Zyklonen, aus Barry und Chorley 1998:174

Hochdruckgebiete bzw. Antizyklonen weisen einen deutlich ruhigeren Witterungsverlauf auf. Durch die absinkende Luftbewegung wird die Luft adiabatisch erwärmt und getrocknet. Daher ist Wolkenbildung selten. Lediglich im Zentrum des Hochs können sich unter Hebung der Tropopause im oberen Konvergenzbereich hohe Zirren bilden. Daher führen Hochdruckgebiete zu stabiler Schichtung mit wenig Vertikalaustausch, oft durch eine Inversionsschicht im Bereich der planetaren Grenzschicht verhindert, und hoher Einstrahlung.

Die Frontalzone mit ihrem mäandrierenden Verlauf um den Globus ist die Quelle der Hoch- und Tiefdruckgebiete. Da die Corioliskraft vom Äquator zum Pol zunimmt, beeinflusst sie die Richtung der Druckgebilde. Tiefdruckgebiete werden, wie oben erläutert, polwärts abgelenkt und Hochdruckgebiete äquatorwärts. Dies hat zur

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

Folge, dass sich auf der Nordhalbkugel Tiefdruckgebiete vermehrt im Norden entlang der polaren Tiefdruckrinne ansammeln und Hochdruckgebiete entlang des subpolaren Hochdruckgürtels (Häckel 1999:278). Die Zone, in der die thermischen Gegensätze verdichtet sind, bildet die Polarfront aus. Es gibt Bereiche, in denen die Mäander der Frontalzone in Form von polwärts gerichteten Hochdruckkeilen und äquatorwärts gerichteten Tiefdrucktrögen besonders häufig auftreten (Weischet 2002:232). Hochdruckkeile dominieren vor der Westküste Nordamerikas und Europas. Tröge treten besonders häufig über den Ostseiten Nordamerikas und Asiens und in etwas abgeschwächter Form über Osteuropa auf. Für die Spurenstoffverteilung ist hier von Belang, dass an der Westseite der Tröge trockene stratosphärische Luftströme aus der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre – sogenannte *dry intrusions* - in die Troposphäre eingetragen werden können (Schultz 2001). Sie sinken hinter der Kaltfront ab und sind aufgrund ihrer Herkunft durch hohe Ozonkonzentrationen gekennzeichnet.



**Abbildung 2.6** Druckverhältnisse und Witterungserscheinungen beim Durchzug einer Zyklone, aus Barry und Chorley 1998:162

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

Zwischen dem subpolaren Hochdruckgürtel und dem Bereich am Äquator – innertropische Konvergenzzone genannt - wo durch die höchste solare Einstrahlung starke Konvektionsprozesse und Konvergenzen zu einem hohen Massendefizit am Boden führen, entsteht ein Druckgefälle. Der Gradientwind wird äquatorwärts durch die Corioliskraft nach Osten abgelenkt. Da letztere aber nahe des Äquators sehr gering ist, enthält die Strömung eine nordöstliche Komponente auf der Nordhalbkugel und eine südöstliche Komponente auf der Südhalbkugel. Sie wird als Passat bezeichnet. Die beiden Passatäste der Hemisphären strömen aufeinander zu, werden in der innertropischen Konvergenzzone zusammengeführt, steigen auf und strömen als Antipassate wieder zurück. Diese Zirkulation wird als Hadleyzelle bezeichnet. Die Höhenströmung Richtung Pol wird bei zunehmender Breite von der Corioliskraft beeinflusst und nach Osten abgelenkt. Sie entwickelt ebenfalls einen Strahlstrom-Charakter und wird als Subtropen-Jet bezeichnet (Lauer und Bendix 2006:192). Der absinkende Ast der Passate ist durch adiabatische Erwärmung sehr trocken und die Quelle für die Ausbildung der Wüsten in den Subtropen der Erde. Der aufsteigende Ast ist durch die hohe Verdunstung über den Ozeanen und die starke Konvektion über dem Äquator labilisiert und weist einen hohen Wasserdampfgehalt auf. Wo die absinkende Passatströmung auf die Bodenkonvektion trifft, entwickelt sich die Passatinversion, welche in Richtung Äquator unter zunehmender Einstrahlung und Oberflächenerwärmung ansteigt. Die Passatschicht ist bei den Auswertungen der Spurengasverteilungen gut im Wasserdampf-Mischungsverhältnis nachzuweisen (vgl. Kap.4.4.2).

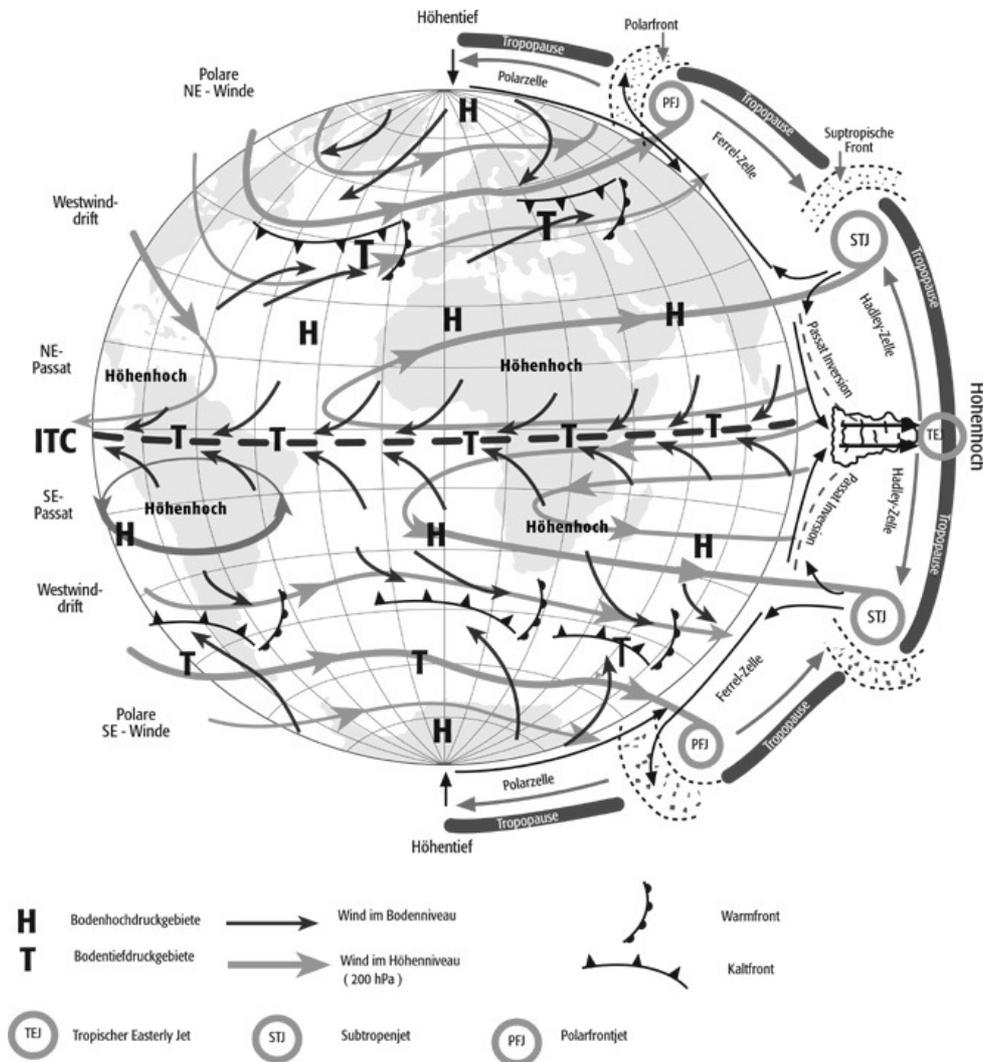
Die polare Zirkulation ist durch die hohe Wirkung der Corioliskraft gekennzeichnet. Kaltlufthochs, welche sich an den Polen bilden, können die Luftdruckdifferenz zur polaren Tiefdruckrinne nicht ausgleichen, allenfalls durch Kaltluftausbrüche oder Warmluftvorstöße (Häckel 1999:279).

Die Monsunzirkulation spielt im Rahmen dieser Arbeit keine wesentliche Rolle, sollte aber zur Vollständigkeit kurz genannt werden. Auch sie beruht auf der unterschiedlichen spezifischen Wärme von Land- und Wassermassen. Im Hemisphärensommer bilden sich Hitzetiefs über den stark erwärmten Landflächen aus. Besonders stark ausgeprägt ist das Ferrel'sche Hitzetief über Zentralasien. Es bewirkt bei der Nordwärtsverlagerung der innertropischen Konvergenzzone und dem Übertritt des Südpassates auf die Nordhalbkugel ein Ansaugen dieser Luftmassen.

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

Der Südpassat gerät beim Überschreiten des Äquators unter den umgekehrten Drehsinn der Corioliskraft und wird zum Südwestwind.

Die allgemeine Zirkulation der Atmosphäre mit allen Teilkomponenten ist in Abb. 2.7 im Überblick noch einmal dargestellt.



**Abbildung 2.7** Allgemeine Zirkulation der Atmosphäre aus Spektrum der Wissenschaft Verlagsgesellschaft mbH (01.11.2008) Lexika, atmosphärische Zirkulation, Zirkulationsprozesse

URL: <http://www.wissenschaft-online.de/abo/lexikon/geogr/553>

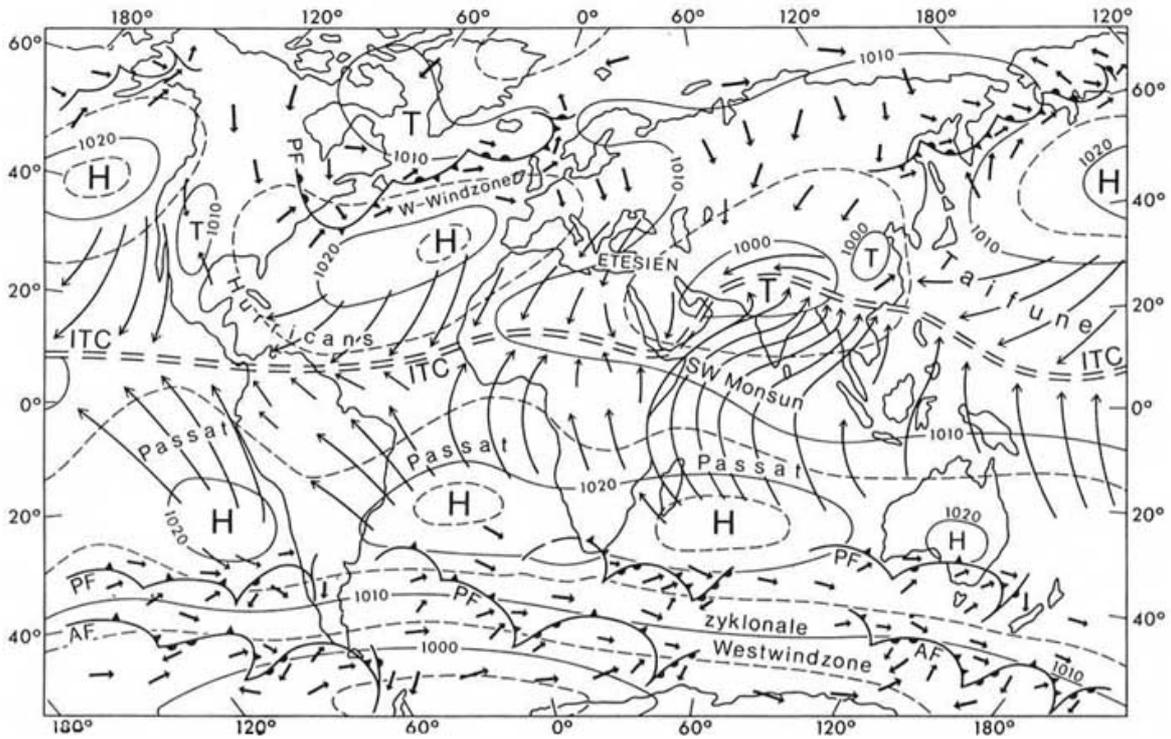
Die unterschiedliche Land-Wasser-Verteilung auf der Erde bewirkt regionale Abweichungen von diesem Schema und charakteristische Zirkulationsformen. Der Schwerpunkt der subtropisch-randtropischen Hochdruckgebiete liegt über den Ostseiten der Ozeane. Das Azorenhoch ist ein Beispiel hierfür. Da sich dadurch im

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

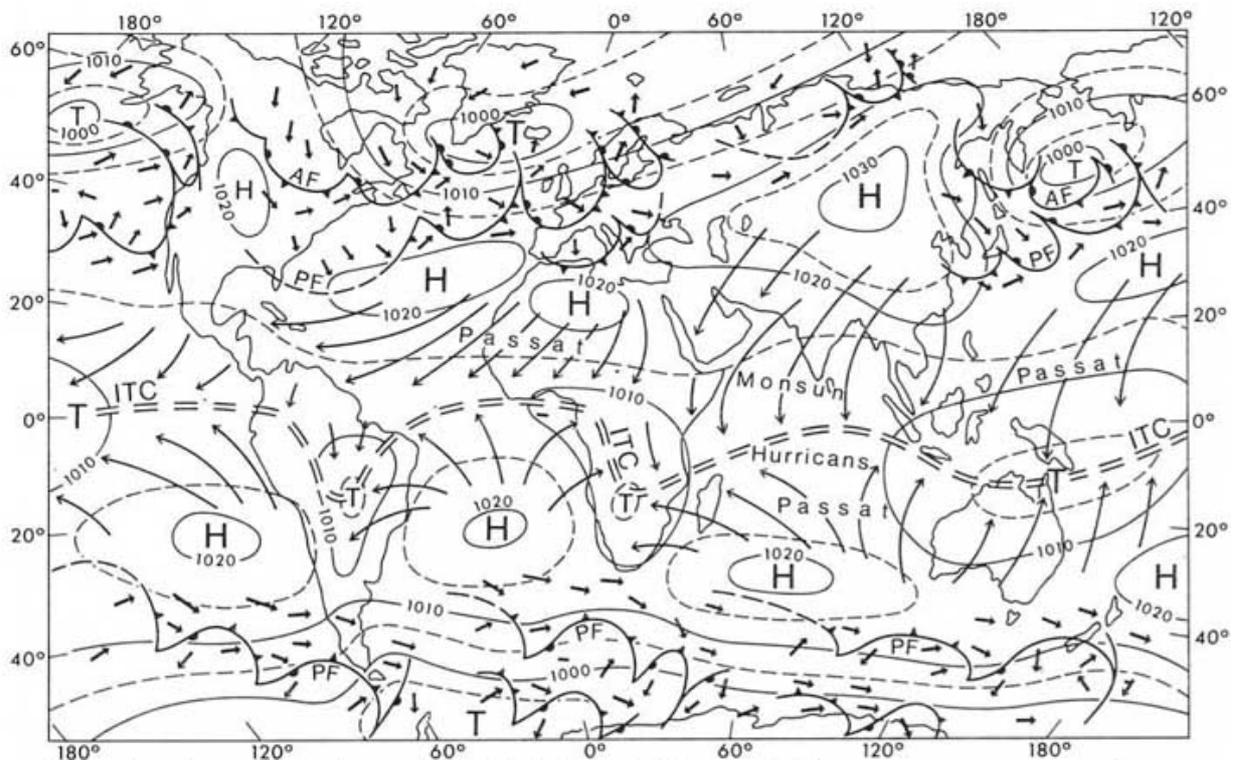
Winter der meridionale Temperaturgradient zwischen polarer Kaltluft und tropischer Warmluft in diesen Gebieten besonders verschärft, gelangen subpolare Zyklonen weiter äquatorwärts. Dies hat ergiebige zyklonale Niederschläge zur Folge und ist das Charakteristikum für die Winterregensubtropen der Erde auf den Westseiten der Kontinente, Südeuropa, Kalifornien, Chile, Südwestafrika und Westaustralien. In Südeuropa reicht das Winterregengebiet bis weit nach Osten, da das Mittelmeer keine Barriere für die Luftmassen darstellt wie anderweitig Gebirgszüge es sind (Weischet 2002:261). Die Sommerregengebiete sind durch konvektive Niederschläge gekennzeichnet und liegen vor allem an den Ostseiten der Kontinente. Sie schließen sowohl die sommerfeuchten Tropen als auch die Sommerregensubtropen mit ein. Letztere sind auf der Karte der Klimazonen in Abb. 4.14 als Cfa gekennzeichnet. Sie sind voll humid wie die Klasse Cfb, zu der auch Mitteleuropa zählt, aber liegen auf der gleichen Breite wie die Klasse Csb an den Westküsten, die durch trockene Sommer gekennzeichnet ist. Die hohe Konvektion im Sommer schlägt sich im Wasserdampfgehalt wieder. Auch dies lässt sich anhand der MOZIAIC-Daten nachweisen. Die beiden Abb. 2.8 und 2.9 veranschaulichen abschließend die Luftdruckverteilung und Luftströmungen an der Erdoberfläche im Juli und im Januar. Die dargestellten Mechanismen der allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre haben, wie schon mehrfach erwähnt, direkten Einfluss auf die Spurenstoffverteilungen in der Atmosphäre.

Ein Beispiel ist die von Stohl 2001 erstellte Analyse zahlreicher dreidimensionaler Luftmassentrajektorien in Form einer Einjahres-Klimatologie von Luftmassen in der nordhemisphärischen Troposphäre. Darin identifiziert er warme Luftmassen, sogenannte *warm conveyor belts* (*wcb*), deren Herkunftsgebiete in den Grenzschichten über den warmen Wasserbecken vor den Ostküsten Nordamerikas und Asiens liegen. Die chemischen Eigenschaften dieser Luftmassen sind somit von den weltweit am dichtesten industrialisierten Regionen beeinflusst (Stohl 2001).

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre



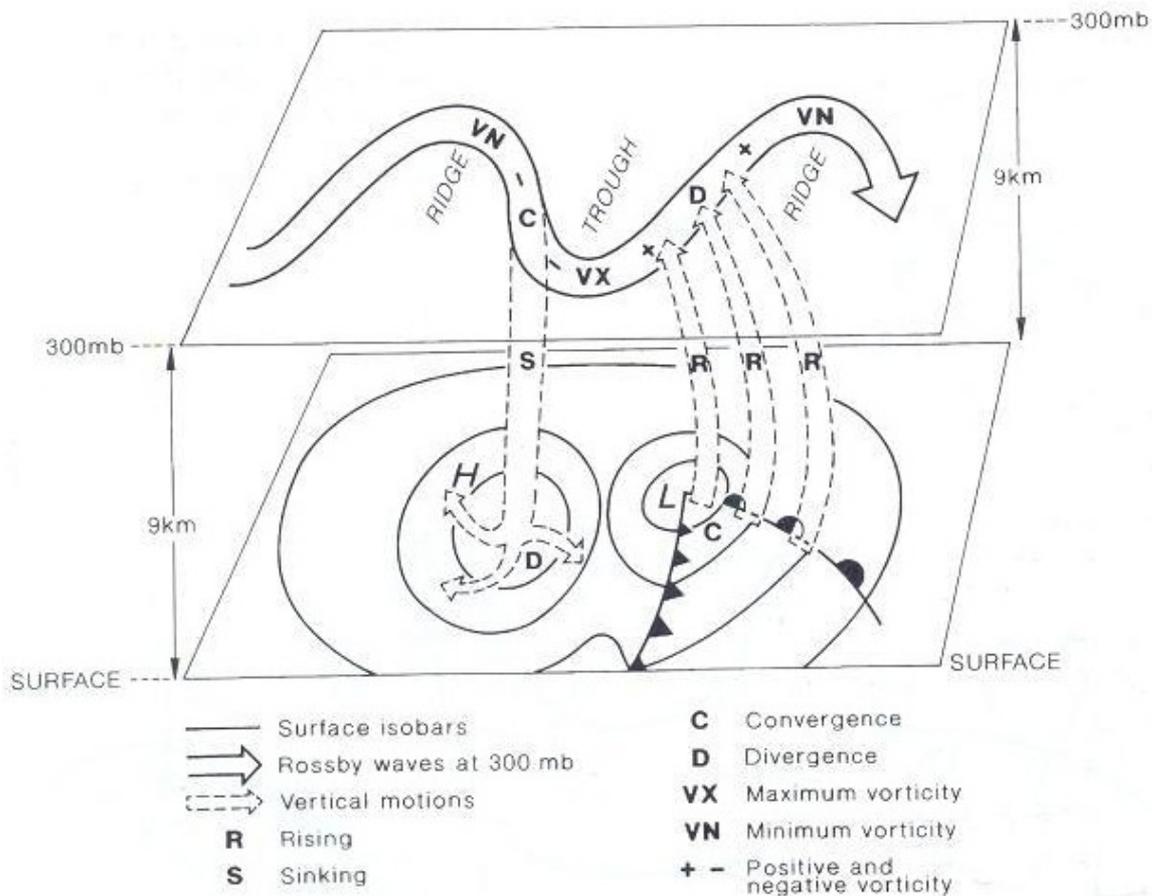
**Abbildung 2.8** Luftdruckverteilung und Luftströmung im Mittel für die bodennahe Reibungszone im Juli (Weischet 2001:241)



**Abbildung 2.9** Luftdruckverteilung und Luftströmung im Mittel für die bodennahe Reibungszone im Januar (Weischet 2001:241)

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

Nach den vorangegangenen Ausführungen ist Europa an der Westseite des Eurasischen Kontinents kein oder selten das Ursprungsgebiet solcher *warm conveyor belts*. Sie sind an die Tröge bzw. deren Vorderseite gebunden, die bevorzugt über dem Osten Nordamerikas und Asien auftreten. In Abb. 2.10 entsprechen die *conveyor belts* dem gestrichelten Pfeil auf der Trogvorderseite. Damit sind die Chancen europäischer Emissionen, die obere Troposphäre durch *conveyor belts* zu erreichen, geringer. Hohe Schadstoffkonzentrationen in den oberen Troposphärenbereichen über Europa werden hingegen regelmäßig durch Luftmassenadvektion nordamerikanischer Herkunft erreicht (Stohl 2001).



**Abbildung 2.10** Luftströmung im Bereich einer außertropischen Zyklone aus Barry und Chorley 1998:173

## 2. Grundlagen zur Ozonchemie und zur Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre

Der Einfluss stratosphärischer Luftmassen ist ebenfalls mit den Tiefdrucktrögen verbunden. Die Stratosphäre ist die Quelle ozonreicher Luftmassen. Dort ist der Hauptmassenfluss polwärts und absinkend außerhalb der Tropen gerichtet (Holton 1995:431).

Eine starke, polwärtige und nach unten gerichtete Zirkulation (residual circulation) im Hemisphärenwinter transportiert Ozon aus der chemisch aktiven Region der äquatorialen mittleren Stratosphäre in die hohen Breiten der unteren Stratosphäre, wo die hohen Konzentrationen über den Winter aufgebaut werden, um das Frühjahrsmaximum zu produzieren (Holton 1998:431). Als Ausgleich der in die untere außertropische Stratosphäre gerichteten Zirkulation wirkt der Transport durch die Tropopause in die Troposphäre in den mittleren Breiten durch frontale Prozesse an Jetstreams. Diese bilden Intrusionen stratosphärischer Luftmassen von 100 km horizontaler Breite und 1 km vertikaler Ausdehnung in die Troposphäre. Die Intrusionen werden schnell durch vertikale Durchmischung zerstört, bilden aber eine wichtige Senke zum Ausgleich der Ozonproduktion in der tropischen Stratosphäre (Holton 1998:431).

Das Maximum stratosphärischer Intrusionen liegt im Winter über Nordamerika und Ostasien. Im Sommer ist das Auftreten trockener stratosphärischer Intrusionen in der unteren Troposphäre am niedrigsten, tritt praktisch nicht auf (Stohl 2001). Davies und Schuepbach (1994) haben für Europa in zwei seltenen Fallbeispielen nachgewiesen, dass stratosphärische Intrusionen an der Rückseite von Kaltfronten zu kurzzeitigen Spitzen in den Ozonkonzentrationen führen. In beiden Fällen traten sie im Zusammenhang mit Tropausenfalten an der Westseite von Tiefdrucktrögen bzw. Kaltlufttropfen auf (Davies und Schuepbach 1994).

### 3. MOZAIC – PROJEKTbeschreibung UND DATENSATZ

MOZAIC (Measurement of ozone, water vapour, carbon monoxide, and nitrogen oxides by Airbus in-service aircraft) ist ein Klimaforschungsprojekt der Europäischen Gemeinschaft. Ziele sind unter anderem die Beschreibung vertikaler und zeitlicher Verteilungen von Ozon und Wasserdampf an verschiedenen, über mehrere Kontinente verteilte Flughafenstationen und die Untersuchung von saisonalen und geographischen Variationen der gemessenen Verteilungen in Bezug auf ihre natürlichen und anthropogenen Quellen (Marenco 1998).

Dazu wurden fünf Passagierflugzeuge des Typs Airbus A 340-300 mit Instrumenten zur Messung von Ozon und Wasserdampf, später auch von Stickoxiden und Kohlenmonoxid ausgerüstet. Da die Tropopause in den Mittelbreiten annähernd in der Reiseflughöhe von Passagierflugzeugen liegt, bieten diese sich hervorragend als Messplattform an.

Träger des Projektes waren Forschergruppen aus Deutschland, Frankreich und England sowie Airbus Industries sowie zu Beginn die europäischen Fluggesellschaften Lufthansa, Air France, Austrian und Sabena, welche den kostenlosen Transport der Messgeräte bewerkstelligten. Der von Sabena betriebene Airbus wurde nach dem Konkurs der Fluggesellschaft von Lufthansa<sup>1</sup> übernommen. Damit betrieb Lufthansa drei der ausgerüsteten Airbusse, Austrian und Air France jeweils einen.

Das MOZAIC - Konsortium besteht auf wissenschaftlicher Seite aus dem CNRS Toulouse, dem Forschungszentrum Jülich, der University of Cambridge, Meteo France und der University of Reading. Die Zertifizierung und Installation der Messgeräte obliegt Lufthansa Technik und Airbus.

Gemessen werden die Spurenstoffe Ozon und Wasserdampf seit der ersten 3-Jahresphase 1993 bis 1996, die Messungen begannen im August 1994. Im Jahr

---

<sup>1</sup> Im MOZAIC-Nachfolgeprojekt IAGOS (seit April 2005) wird der Sabena-Airbus von der Fluggesellschaft Air Namibia betrieben

<sup>2</sup> NO<sub>y</sub> ist die Sammelbezeichnung für Stickstoffmonoxid NO und seine atmosphärischen Oxidationsprodukte wie NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, HNO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, HNO<sub>4</sub>, Peroxyacetylnitrat (PAN) etc.

### 3. MOZAIC – Projektbeschreibung und Datensatz

1996 startete eine zweite 3-Jahresphase, welche über die Fortführung der Messung von Ozon und Wasserdampf und deren Interpretation eine Machbarkeitsstudie zum Einsatz neuer Flugzeugmessgeräte zur Messung von Stickoxiden und Kohlenmonoxid beinhaltete (Marenco et al. 1998). Diese Messungen wurden in der dritten Phase von 2001 bis 2004 realisiert. Seit Ende der dritten Phase transportieren die Fluggesellschaften Lufthansa und Air Namibia (früherer Sabena-Airbus) auf drei Airbussen die Messgeräte weiterhin kostenfrei.

Die Ozonmessung erfolgt mittels UV-Absorption, die Wasserdampfmessung mit Hilfe eines Humidity Capacity Sensors, die Kohlenmonoxidmessung durch modifizierte Infrarot-Absorption und die Stickoxidmessung durch den Nachweis von Stickstoffmonoxid anhand seiner Chemilumineszenz bei der Reaktion mit Ozon. Kombiniert ist die letztere Messmethode mit der katalytischen Konvertierung der anderen  $\text{NO}_y$ -Komponenten zu NO über einer heißen Goldoberfläche bei  $300^\circ\text{C}$  in Gegenwart von molekularem Wasserstoff. Das angesaugte  $\text{NO}_2$  wird über einer auf  $300^\circ\text{C}$  erhitzten Goldoberfläche unter Zugabe von Wasserstoff zu NO reduziert, was wiederum mit in situ produziertem Ozon zu  $\text{NO}_2$  reagiert (Volz-Thomas et al. 2004). Das Messgerät läuft vollautomatisch. Durch das Einfahren des Fahrwerks beim Start bzw. durch das Ausfahren bei der Landung erhält das Instrument das Signal zum Start bzw. Ende der Messung. Eine Kalibrierung erfolgt nach 50 Flügen bzw. 400 Flugstunden (Volz-Thomas et al. 2004).

Bei dem Ozonanalysator handelt es sich um ein UV-Absorption Instrument der Firma Thermo-Electron, Model 49-103 (Marenco et al. 1998, Thouret et al. 1998). Die Umgebungsluft (150-250 mbar) in Reiseflughöhe wird mit einer Teflon KNF Neuberger-Pumpe angesaugt. Die Nachweisgrenze liegt bei 2 ppb, die Genauigkeit bei  $\pm 2 \text{ ppb} + 2\%$ . Dies entspricht der oberen Grenze der Fehlerquote. Die Daten zeigen im Allgemeinen bessere Eigenschaften (Marenco et al. 1998, Thouret et al. 1998). Die Instrumente werden nach jeder Flugperiode, welche etwa 12 bis 18 Monate andauert, im Labor kalibriert. Außerdem wird jedes Instrument bei jedem Flug mithilfe eines eingebauten Ozongenerators überprüft. Das gelegentlich auftretende Überschneiden der Flugrouten zweier parallel messender Flugzeuge ermöglicht weiterhin direkte Vergleiche bezüglich der Messgenauigkeit (Thouret et al. 2006).

### 3. MOZAIC – Projektbeschreibung und Datensatz

Zur Messung des Wasserdampfs wird ein speziell entwickelter Feuchtesensor der Firma Aerodata, Braunschweig verwendet, welcher auf einem Feuchte- und Temperaturtransmitter der Firma Vaisala, basiert. Die Sensoreinheit wird nach jeweils 500 Flugstunden in der Simulationskammer in Jülich kalibriert, wobei eine Belastbarkeit der Feuchtemessungen von der Erdoberfläche bis zur Tropopause gefunden wurde (Helten et al. in Marengo et al. 1998).

Die Kohlenmonoxidmessungen basieren auf einem speziell auf Flugzeugmessungen angepassten Infrarot-Analysegerät mit einer verbesserten Empfindlichkeit von  $\pm 5$  ppbv und einer Präzision von  $\pm 5$  % bei einer zeitlichen Auflösung von 30 Sekunden (Nedelec et al. 2003).

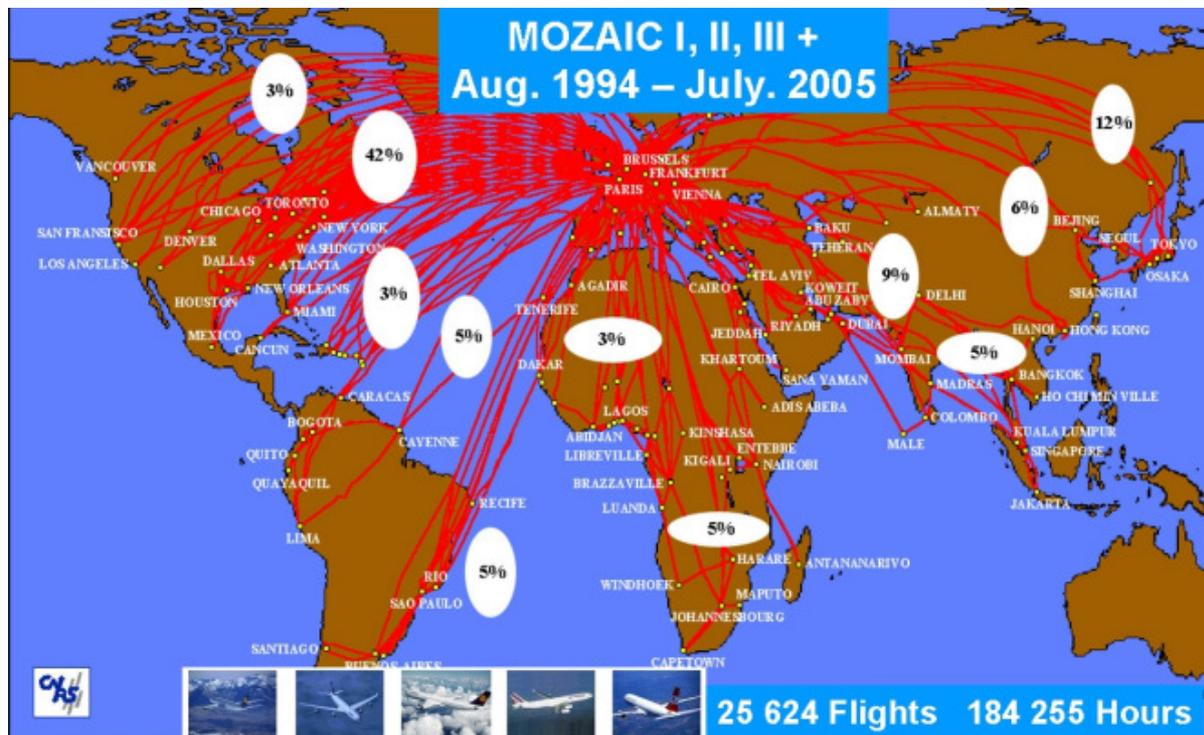
Die Ozon- und Kohlenmonoxidmessungen werden vom CNRS Toulouse durchgeführt. Durch das Forschungszentrum Jülich, ICG II, erfolgt die Messung von Wasserdampf und Stickoxiden. Das Gesamtgewicht der Messapparatur beträgt 150 kg bei einer Zeitauflösung von 4 Sekunden. Das Stickoxidmessgerät wiegt 50 kg und die Nachweisgrenze liegt bei  $\pm 50$  ppt. Dies ermöglicht die Detektierung von kleinräumigen Signalen wie z. B. Emissionen vorbeifliegender Flugzeuge.

Seit Aufnahme der Messungen im August 1994 bis August 2005 wurden auf 150.000.000 km Daten von Ozon und Wasserdampf auf allen 5 Flugzeugen gesammelt. 2001 startete die dritte Phase. Mit MOZAIC III wurde auf einer der Lufthansa-Maschinen das Instrument zur Stickoxidmessung installiert, welches bis 2005 Daten von 3000 Flügen lieferte, und im Jahr 2002 kamen zusätzlich auf allen fünf Flugzeugen Messgeräte zur Kohlenmonoxidmessung hinzu. Der Datensatz umfasst mehr als 50.000 Vertikalprofile gesammelt auf 25.624 Flügen bis Juli 2005. Dies entspricht 184.255 Flugstunden. 90% der Daten werden in Reiseflughöhe zwischen 9 und 12 km gewonnen, die übrigen Daten entfallen auf die Start- und Landephase. Informationen zum Projekt, der weiteren Entwicklung und den Daten sowie Zugangsinformationen zu den Daten können der MOZAIC-Homepage <http://mozaic.aero.obs-mip.fr/web/> entnommen werden.

Die globale Abdeckung der MOZAIC-Flüge ist Abb. 3.1 zu entnehmen. Die Nordhemisphäre und insbesondere der nordatlantische Flugkorridor sind sehr gut belegt, überwiegend die Ziele an der US-amerikanischen Ostküste werden angefliegen. Auch der mittlere und ferne Osten sind gut repräsentiert. Der Flugkorridor über Asien ist jedoch sehr viel enger. Transäquatoriale Flüge führen

### 3. MOZAIC – Projektbeschreibung und Datensatz

weitgehend nach Zentral- und Südafrika, historisch bedingt durch die belgische und französische Fluggesellschaft. Diese Flüge an die südamerikanische Ost- und Westküste liefern Daten des Gebietes über dem tropischen Atlantik. Die Metropolen Südostasiens werden ebenfalls angeflogen. Bangkok, Ho Chi Minh Stadt und Hanoi sind mit jeweils weit über 100 Vertikalprofilen gut belegt.



**Abbildung 3.1** Laboratoire d'Aérologie 20.09.2008: Übersicht der MOZAIC-Flugrouten. © 1994-2007 Laboratoire d'Aérologie, O.M.P. Toulouse. URL: <http://mozaic.aero.obs-mip.fr/web/features/information/map.html>.

## 4. KLIMATOLOGIE DER SPURENGASE IN DER TROPOSPHÄRE

Das folgende Kapitel gibt eine Übersicht über die Verteilung der Spurenstoffe Ozon, Kohlenmonoxid und Stickoxide in Troposphäre. Zunächst wird die obere Troposphäre betrachtet, wie bereits in früheren Arbeiten (vgl. Thouret et al. 1998). Die MOZAIC-Daten liegen auf dem zentralen Server des ICG-II u.a. im Dateiformat netCDF sowie als Binärdateien vor, welche von der Statistik-Software SAS gelesen und als Textdateien ausgegeben werden können. Die Aussortierung der Daten bezüglich des Zeitraums, der Höhen-, Längen- und Breitenbereiche, die Berechnung von Mittelwerten, Standardabweichung, Median und Perzentilen erfolgte mit Hilfe der UNIX-kompatiblen Software SAS. Die im folgenden Kapitel untersuchten Höhenbereiche obere Troposphäre, Tropopausenregion und untere Stratosphäre wurden zunächst aus dem Datensatz extrahiert.

Die Verwendung einer thermischen Tropopause nach dem WMO-Kriterium  $dT/dz < 2 \text{ K/km}$  kann keine Anwendung finden (vgl. Thouret et al. 2006), da Vertikalprofile der Temperatur nur im Bereich der Flughäfen verfügbar sind, während des Reiseflugs jedoch nicht gewonnen werden können. Die dynamische Tropopause ist durch einen großen Gradienten der Potentiellen Vorticity (PV) gekennzeichnet. Als Referenz für die dynamische Tropopause wurde die Druckfläche, bei der die Potentielle Vorticity (PV) den Wert 2 annimmt, verwendet. Die Potentielle Vorticity ist als Variable im MOZAIC-Datensatz enthalten. Sie wurde mithilfe des ECMWF-Modells (European Centre of Medium-Range Weatherforecast) berechnet und durch Interpolation an die Flugzeugtrajektorien angepasst (Thouret et al. 2006).

Die Wahl der 30 hPa- Level erfolgte in Anlehnung an die vertikalen Hybrid-Level des globalen Chemietransport-Modells MOZART (Horowitz et al. 2003). Dieses ist vertikal von der Erdoberfläche bis in Höhe des 4 hPa-Niveaus, welches einer Höhe von 40 km entspricht, in 34 Höhenlevel aufgelöst (Horowitz et al. 2003). Die MOZAIC-Daten wurden bereits mit Modellrechnungen aus MOZART verglichen (Thomas et al. in preparation). Dementsprechend sind untere Stratosphäre (LS), Tropopause (TP) und obere Troposphäre (UT) definiert als:

$$\text{TP: } (p(\text{PV}=2)+15 \text{ hPa}) > p > (p(\text{PV}=2)-15 \text{ hPa}) \quad [35]$$

$$\text{LS: } (p(\text{PV}=2)-15 \text{ hPa}) > p > (p(\text{PV}=2)-45 \text{ hPa}) \quad [36]$$

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

$$UT:(p(PV=2)+45 \text{ hPa}) > p > (p(PV=2)+15 \text{ hPa}) \quad [37]$$

Die Längen- und Breitenkoordinaten sind im Datensatz minutengenau aufgelöst. Die Zeitrechnung beginnt mit der ersten Messung am 01.08.1994 und läuft in Minuten fort. Zur Berechnung des genauen Datums wurden in SAS die Uhrzeit mit der Funktion  $\text{datum} = \text{Int}(\text{jtime}) + 12418$  ausgerechnet und dann Tag, Monat und Jahr (gleichnamige SAS-Funktionen) jeweils als Funktion dieses Datums berechnet.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

##### 4.1 MITTLERE O<sub>3</sub>-, CO- UND NO<sub>y</sub>-VERTEILUNG IN DER OBEREN TROPOSPHÄRE

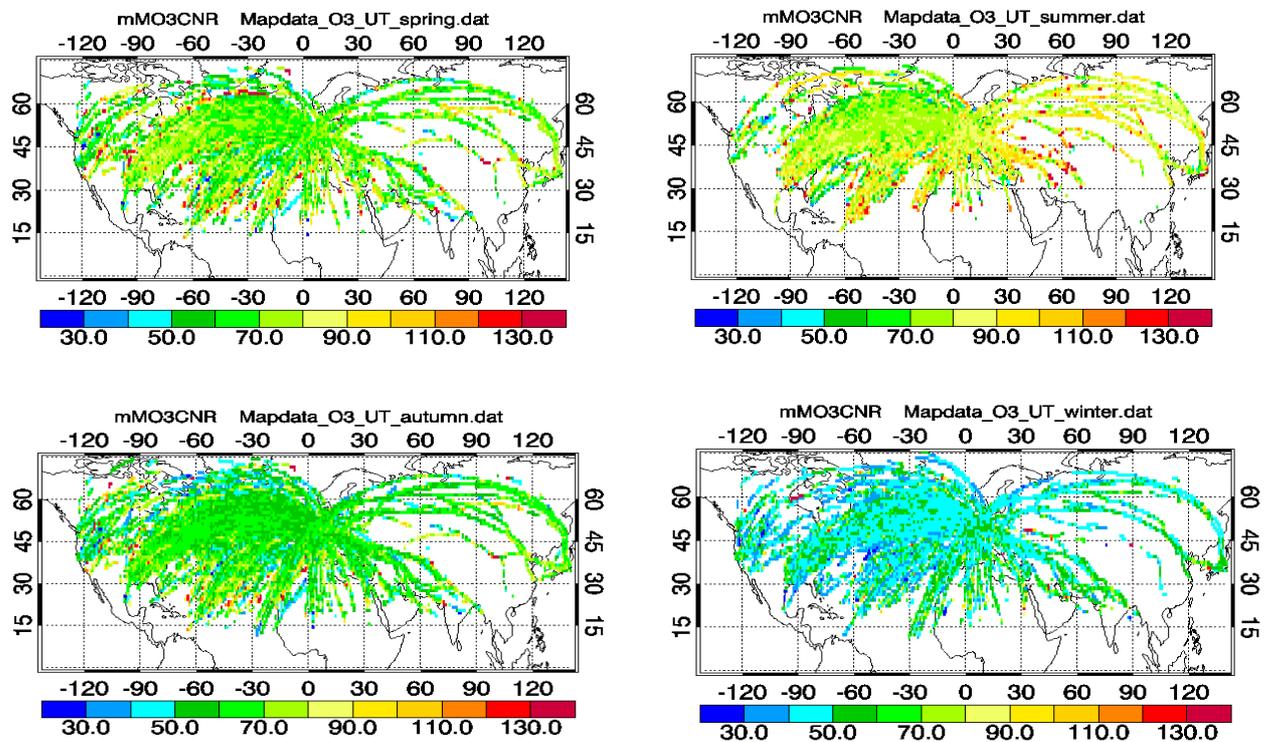
Für die Darstellungen von Abb. 4.1 - 4.3 wurden zunächst Sub-Datensätze mit SAS gebildet. Dazu wurden alle Daten ohne regionale Einschränkung im Zeitraum August 1994 bis August 2005 verwendet und nach den in Kap. 4 beschriebenen Kriterien die Daten der unteren Stratosphäre, der Tropopause und der oberen Troposphäre extrahiert. Auf diese Weise werden stratosphärische und troposphärische Daten nicht vermischt. Die Tropopausenregion ist ebenfalls klar definiert. Eine weitere Unterteilung wurde durch die Einteilung der Eingabedateien in Frühjahr (März, April, Mai), Sommer (Juni, Juli, August), Herbst (September, Oktober, November) und Winter (Dezember, Januar, Februar) erreicht. Durch die Definition der Zeiteinheiten Datum, Monat und Jahr mithilfe der gleichnamigen SAS-Prozeduren wurden Ausgabedateien in jahreszeitlicher Auflösung erzeugt. Danach erfolgte die Berechnung der Verhältnisse NO<sub>y</sub>/O<sub>3</sub>, O<sub>3</sub>/NO<sub>y</sub>, O<sub>3</sub>/CO, NO<sub>y</sub>/CO, CO/NO<sub>y</sub>. Schließlich erfolgte im nächsten Programmschritt die Bildung der Monatsmittelwerte mithilfe der SAS-Prozedur PROC MEANS sowie die Berechnung der Verhältnisse aus den Mittelwerten der Substanzen. Weiterhin wurden in diesem Schritt die Anzahl der Messwerte sowie die Standardabweichung ausgegeben.

Diese Datei wurde mithilfe der Software IDL 6.2 (Interactive Data Language, RSI) zur graphischen Weiterverarbeitung genutzt (Thomas et al. in preparation). Ergebnis waren jeweils vier räumliche Darstellungen nach Jahreszeit, hier dargestellt für die obere Troposphäre.

Abb. 4.1 zeigt die Verteilung der Ozonkonzentration in ppb in der oberen Troposphäre. Die Ozonkonzentration zeigt dabei ein Sommermaximum. Die höchsten Werte liegen mit weit über 100 ppb über dem asiatischen Festland. Die von Roelofs et al. 1997 gefundenen höchsten Werte über dem tropischen Atlantik im September und Oktober sind auch in der Karte der Herbstverteilung zu finden. Die Entstehung dieser Ozonkonzentrationen führen Roelofs et al. auf die photochemische Produktion aus Biomasserverbrennung zurück (Roelofs et al. 1997). Oltmans et al. (2006) verbinden hingegen den Anstieg in den Herbstmonaten in den nordhemisphärischen Tropen während der letzten Dekade sowohl in bodennahen Schichten als auch in Ozonsondierungen auf Hawaii mit einer Verlagerung der Zirkulationsmuster in dieser Jahreszeit mit häufigerem Zustrom von Luftmassen aus

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

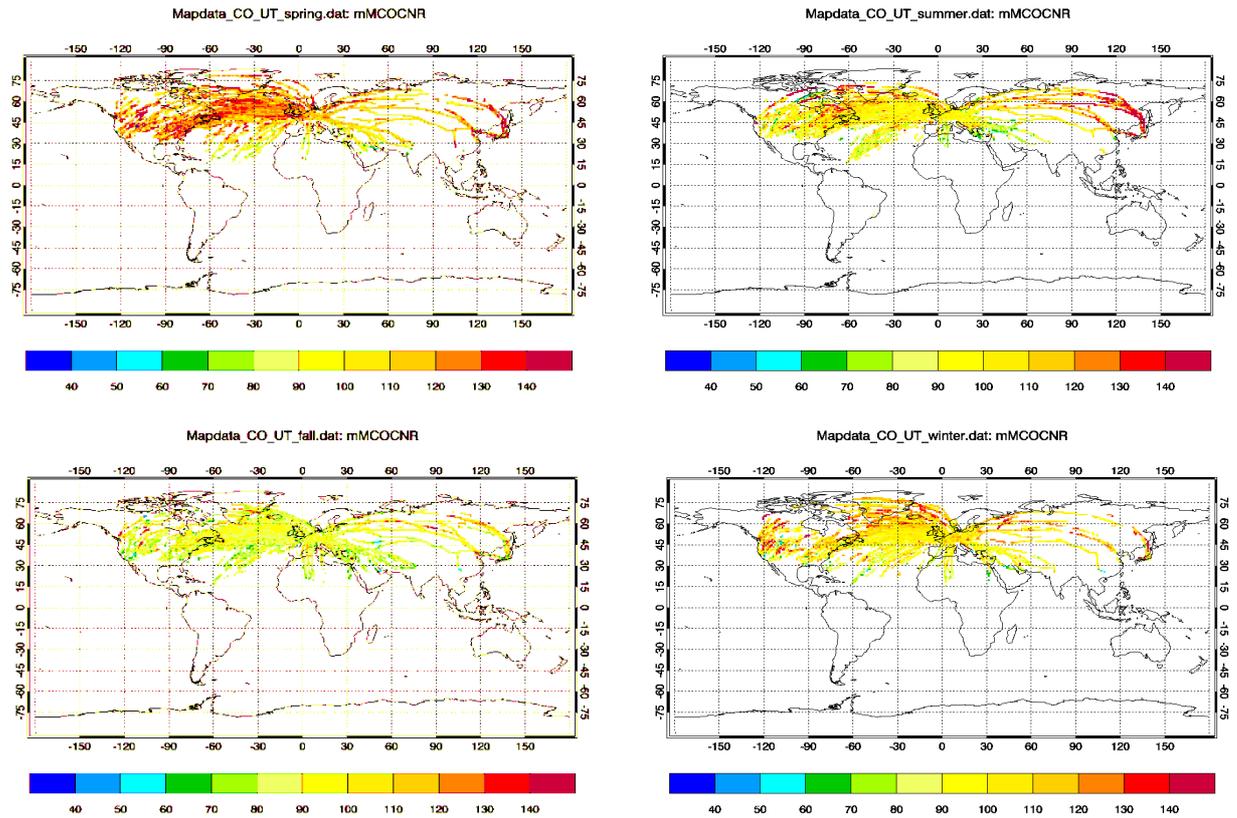
höheren Breiten (Oltmanns 2006). Der Anstieg in den tropischen bodennahen Schichten im Herbst lässt sich gut in Abb. 4.33k erkennen. Das Maximum der Jahreswerte in Caracas liegt im September!



**Abbildung 4.1** Ozonverteilung in ppb in der oberen Troposphäre, Frühjahr (MAM), Sommer (JJA), Herbst (SON), Winter (DJF), Quelle: K. Thomas, A. Volz-Thomas, H.-W. Pätz „Five Years of NO<sub>y</sub> Measurements in the UTLS from MOZAIC“, in preparation

Das Maximum der Kohlenmonoxidkonzentrationen in der oberen Troposphäre, dargestellt in Abb. 4.2, liegt im Frühjahr. Insbesondere die Regionen USA, Nordatlantik und Ostasien weisen Besonderheiten auf. Im Sommer fallen über Kanada und Sibirien bzw. Ostasien hohe Konzentrationen auf, die ihren Ursprung in Waldbränden und Biomasseverbrennung haben könnten. Im Herbst sind die Konzentrationen am niedrigsten, während sie im Winter aufgrund der Heizperiode auf der Nordhalbkugel wieder ansteigen. Die Beobachtungen stehen in guter Übereinstimmung mit den von Emmons (2000) gefundenen Verteilungen.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

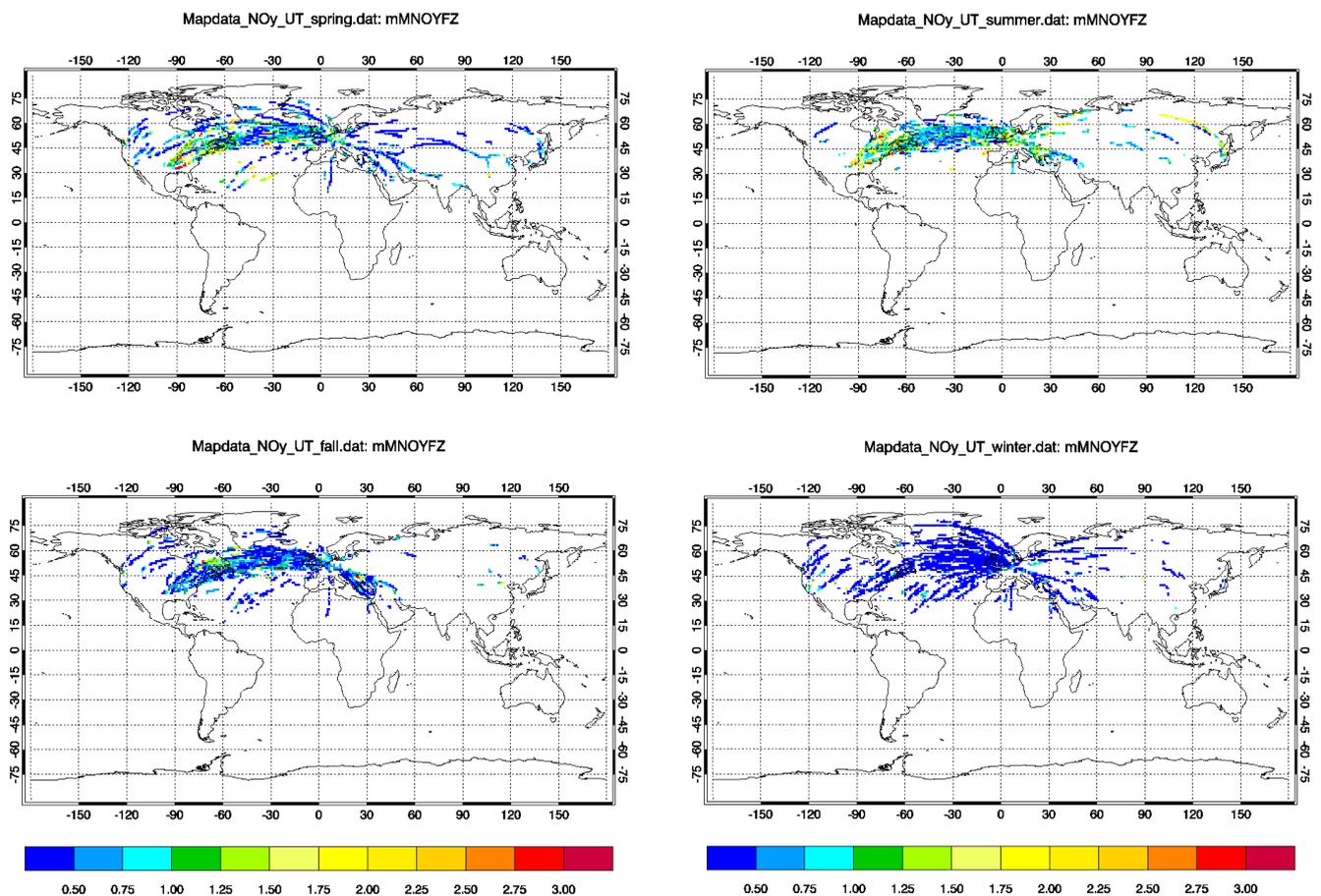


**Abbildung 4.2** Kohlenmonoxidverteilung in ppb in der oberen Troposphäre, Frühjahr (MAM), Sommer (JJA), Herbst (SON), Winter (DJF), Quelle: K. Thomas, A. Volz-Thomas, H.-W. Pätz „Five Years of NO<sub>y</sub> Measurements in the UTLS from MOZAIC“, in preparation

Da nur ein Flugzeug seit 2001 mit einem Stickoxidmessgerät ausgestattet ist, ist die Datendichte geringer als bei den anderen Substanzen. Das Maximum der Stickoxidkonzentration in Abb. 4.3 liegt wie bei Ozon ebenfalls im Sommer. Über den industriellen Agglomerationen Nordamerikas, Europas und Asiens sind die Konzentrationen mit 2-3 ppb erhöht. Über dem Atlantik liegen die Konzentrationen unter 0.5 ppb. In Übereinstimmung damit finden Emmons et al. (2000) östlich des nordamerikanischen Kontinents abfallende Konzentrationen und allgemein variierende Werte zwischen 100 und 1000 ppt in 9-12 km Höhe. Das Minimum liegt mit Werten um knapp 0.5 ppb im Winter. Auffällig ist dabei, dass diese niedrigen Konzentrationen homogen über das Messgebiet verteilt sind. Auch die Flugkorridore über dem Nordatlantik und dem asiatischen Kontinent weisen geringe

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Konzentrationen auf. Dies deutet auf einen sehr geringen Beitrag der Flugzeugemissionen auf die Stickoxidkonzentrationen in der Tropopausenregion hin. Dabei ist zu bedenken, dass das von Flugzeugen emittierte  $\text{NO}_x$  in der Summe mit  $\text{HNO}_3$  einen Anteil zwischen 40-100 Prozent des gemessenen  $\text{NO}_y$  ausmacht (vgl. Kap. 2.1). Schlager et al. (1997) haben Flugzeugemissionen über dem Nordatlantik-Flugkorridor in kurzzeitigen frischen  $\text{NO}_x$ -Spitzen von ca. 2 ppb gefunden. Da die  $\text{HNO}_3$ -Konzentrationen nicht erhöht waren, wurde auf eine geringe Oxidation des  $\text{NO}_x$  geschlossen (Schlager et al. 1997). Flatøy und Hov (1996) finden mithilfe von Modellrechnungen gekoppelt mit einem numerischen Wettervorhersagemodell bei gegebenen meteorologischen Bedingungen und berücksichtigtem konvektivem Transport aus der Grenzschicht eine Produktion von 10-25 Molekülen Ozon pro emittiertem  $\text{NO}_x$ -Molekül von Flugzeugen (Flatøy und Hov 1996).



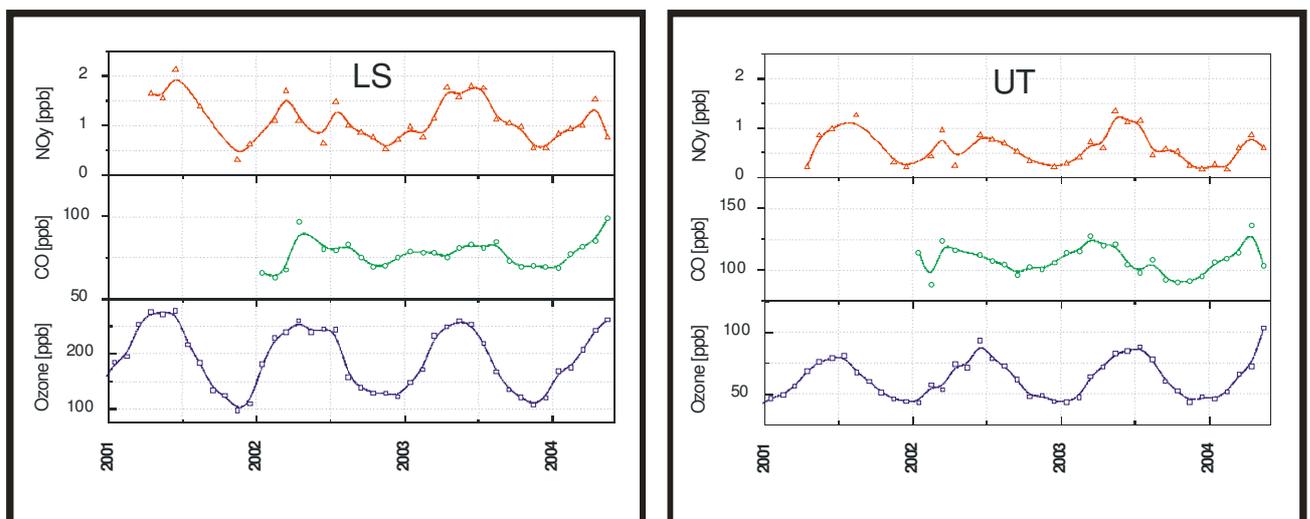
**Abbildung 4.3** Stickoxidverteilung in der oberen Troposphäre, Frühjahr (MAM), Sommer (JJA), Herbst (SON), Winter (DJF), Quelle: K. Thomas, A. Volz-Thomas, H.-W. Pätz „Five Years of  $\text{NO}_y$  Measurements in the UTLS from MOZAIC“, in preparation

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

##### 4.2 JAHRESGANG DER SPURENGASE ÜBER DEM NORDATLANTIK IN DER OBEREN TROPOSPHÄRE UND DER UNTEREN STRATOSPHERÄ

Um Konzentrationsverteilungen in der oberen Troposphäre und in der unteren Stratosphäre aufzuzeigen, wurde der Jahresgang der Spurengase in beiden Höhengniveaus untersucht. Die Auswertungen und Interpretationen dieses Teilkapitels wurden von der Arbeitsgruppe von Dr. Andreas Volz-Thomas gemeinsam erarbeitet, und die originäre Autorenschaft liegt gemeinschaftlich bei den Mitgliedern der Arbeitsgruppe und nicht ausschließlich bei der Autorin der vorliegenden Arbeit.

Zunächst wurde die Region über dem Nordatlantik von 23° bis 63°N und 10° bis 60°W ausgewählt und Monatsmittelwerte für Ozon, Kohlenmonoxid und Stickoxide aus dem Datensatz berechnet.

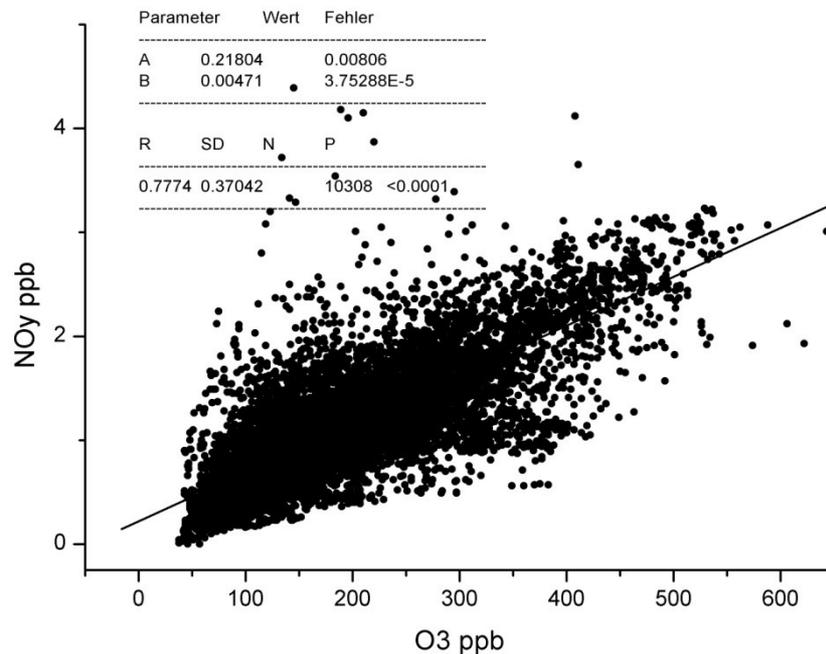


**Abbildung 4.4** Jahresgänge der Ozon-, Kohlenmonoxid- und Stickoxidkonzentration in der unteren Stratosphäre (LS) und oberen Troposphäre (UT) über dem Nordatlantik

Wie aus Abb. 4.1 und 4.3 schon zu erkennen war, haben die Substanzen Ozon und Stickoxide ein Frühjahrsmaximum in der unteren Stratosphäre. Der Jahresgang in Abb. 4.4 ist besonders bei Ozon sehr stark ausgeprägt mit einem Minimum in den frühen Wintermonaten. Die Datengrundlage der Stickoxide ist weniger breit, jedoch lässt sich eine ähnliche Tendenz deutlich erkennen, da beide Substanzen ihre Quelle in der Stratosphäre haben (vgl. Kap. 2.2). Der Korrelationskoeffizient R der beiden

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Substanzen in der unteren Stratosphäre liegt bei 0.78 (vgl. Abb. 4.5). Dies steht in Übereinstimmung mit den Beobachtungen von Neumann et al. (2001).



**Abbildung 4.5** Korrelation von Stickoxiden und Ozon in der unteren Stratosphäre über dem Nordatlantik

Da Kohlenmonoxid am Erdboden emittiert wird, ist ein Jahresgang in den oberen Regionen nur noch schwer zu erkennen. Das über dem Nordatlantik befindliche CO hat seinen Ursprung in den Agglomerationen Nordamerikas und wird mit der hohen Westdrift auf den Atlantik transportiert. Auf diesem Weg hat bereits Oxidation zu CO<sub>2</sub> stattgefunden (Thompson et al. 1994). In der unteren Stratosphäre ist kein Jahresgang mehr erkennbar.

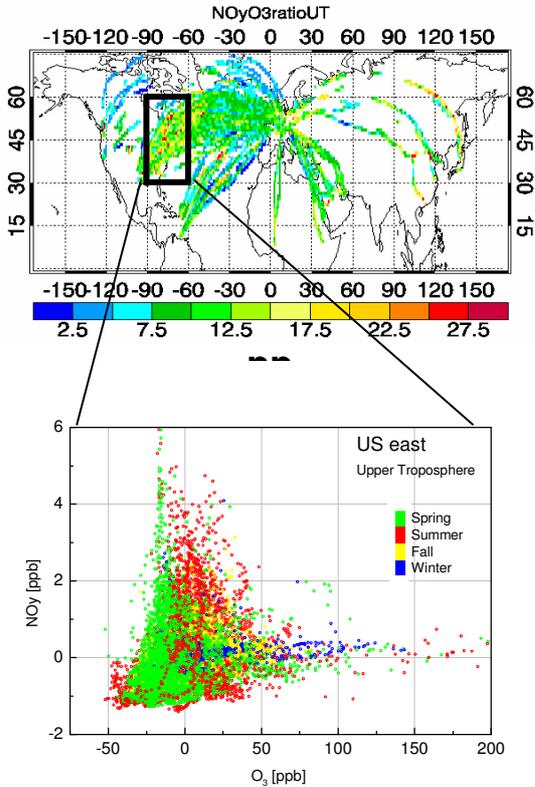
Aufgrund seiner Lebensdauer von mehreren Monaten lassen sich aber in der unteren Troposphäre Muster der CO-Verteilung erkennen. Das Maximum liegt im Vergleich zu Ozon und den Stickoxiden nicht im Sommer, sondern etwas phasenverschoben im Frühjahr. Da Kohlenmonoxid mit keiner der beiden anderen Substanzen korreliert ist, liegt die Vermutung nahe, dass die Quellen von Ozon und Stickoxiden in dieser Region in der Stratosphäre zu finden sind.

Bei Betrachtung der Verhältnisse NO<sub>y</sub> zu CO und NO<sub>y</sub> zu O<sub>3</sub> in Abbildungen 4.6a und 4.6b fällt auf, dass über bestimmten Regionen der Erde besonders hohe

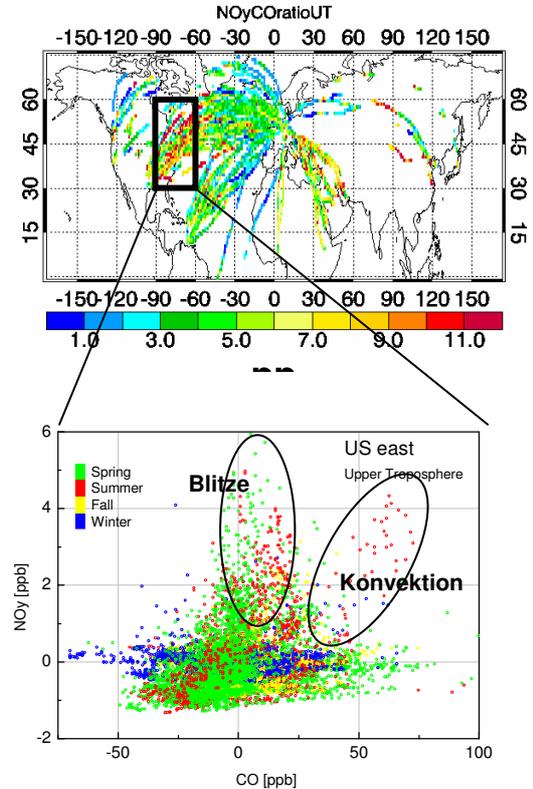
#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Stickoxidkonzentrationen auftreten. Besonders die Ostküste der USA fällt hier ins Auge. Daher wurde für die Region 60° bis 90° West bzw. 30° bis 60° Nord ein Datenbereich extrahiert und gesondert betrachtet.

a)



b)



**Abbildung 4.6** Verhältnis von Stickoxiden a) zu Ozon und b) zu Kohlenmonoxid in ppt/ppb in der oberen Troposphäre. Die unteren Abbildungen zeigen mittelwertbereinigte Daten für den Bereich Ostküste der USA. Der Mittelwert wurde von dem Datensatz subtrahiert, um die Änderungen in den einzelnen Jahreszeiten besser darzustellen. Somit treten auch negative Werte auf.

Die Daten wurden mittelwertbereinigt und die Jahreszeiten farblich markiert. Abbildung 4.6a zeigt das Verhältnis von Stickoxiden zu Ozon, Abbildung 4.6b das von Stickoxiden zu Kohlenmonoxid. Die Ozonkonzentrationen liegen nur im Winter höher im Verhältnis zu den Stickoxidkonzentrationen. Dies könnte auf stratosphärische Luftmassen hindeuten, welche mit dem Jetstream entlang der Polarfront, die in den Wintermonaten über dem Osten der USA weit nach Süden vordringt (Weischet 1996:49), in die obere Troposphäre eingetragen werden.

Beim Verhältnis Stickoxide zu Kohlenmonoxid ergeben sich während der Sommermonate zwei bemerkenswerte Ausprägungen. Zum einen sind die Stickoxide

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

erhöht, während die Kohlenmonoxidwerte sehr niedrig sind. Zum anderen weisen beide Spurengase erhöhte Konzentrationen auf. Sind in der oberen Troposphärenregion erhöhte Kohlenmonoxidkonzentrationen zu finden, so müssen sie durch konvektive Prozesse dorthin gelangt sein, da die Quelle für Kohlenmonoxid ausschließlich an der Erdoberfläche zu suchen ist. Somit kann für beide Spurengase eine gemeinsame Quelle in der planetaren Grenzschicht vermutet werden, da der vertikale Transport hier der wirksame Mechanismus ist.

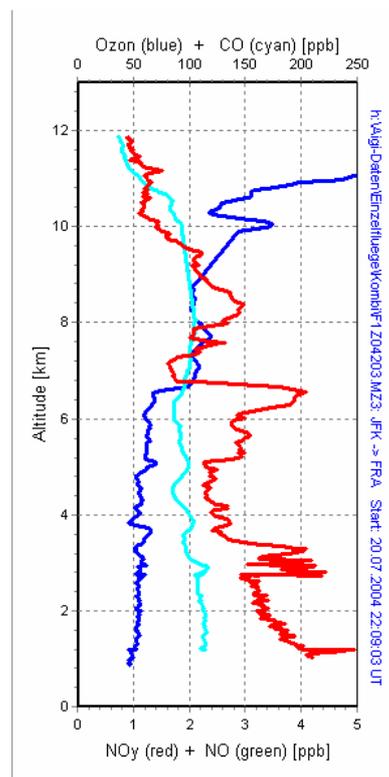
Anders verhält es sich bei erhöhten Stickoxidkonzentrationen und gleichzeitig niedrigem CO. Hier scheint die Quelle eine andere als anthropogene Emissionen aus der Grenzschicht zu sein. Stratosphärische Quellen sind ebenfalls unwahrscheinlich, da in den Frühjahr- und Sommermonaten auch das Ozon niedrige Konzentrationen aufweist. Eine weitere mögliche Quelle sind Blitze. Ob die Gewittertätigkeit einen Einfluss auf die hohen Stickoxidkonzentrationen hat, wird exemplarisch im Kapitel 4.3 mit Hilfe von Blitzdaten aus dem NASA-Projekt INTEX untersucht.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

##### 4.3 ZUSAMMENHANG VON BLITZEN UND HOHEN $\text{NO}_y$ -KONZENTRATIONEN AM BEISPIEL VON FRANKFURT UND NEW YORK

Zur Untersuchung der Frage, ob ein Zusammenhang zwischen erhöhten  $\text{NO}_y$ -Konzentrationen und Blitzen besteht, wurden Landprofile von MOZAIC-Flügen mit erhöhten  $\text{NO}_y$ -Konzentrationen unter Zuhilfenahme von meteorologischen Informationen analysiert. Für den Flughafen Frankfurt wurden synoptische Karten des Deutschen Wetterdienstes für den Zeitraum 20. und 21. Juli 2004 ausgewertet. Für den New Yorker Flughafen John F. Kennedy wurden exklusive Blitzdaten aus der NASA-Feldkampagne INTEX hinzugezogen, die von Dr. Kenneth Pickering von der University of Maryland zur Verfügung gestellt worden waren.

Die Vertikalprofile der Spurenstoffe Ozon, Kohlenmonoxid und Stickoxide für ein Landprofil in Frankfurt am Main am 21. Juli 2004 sind Abb. 4.7 zu entnehmen.



**Abbildung 4.7** Vertikalprofile des Landeanflugs auf Frankfurt am 20.07.2004

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Die Ozonkonzentration liegt konstant bei 50 ppb und steigt ab etwa 7 km Höhe kontinuierlich auf 150 ppb an. Zwischen 10 und 11 km liegt die Tropopause, oberhalb dieser Grenze erfolgt der stratosphärische Ozonanstieg. Die Kohlenmonoxidkonzentrationen liegen im gesamten Profil vom Erdboden bis zur Tropopause bei 100 ppb, in der Stratosphäre fallen sie kontinuierlich ab. Die Stickoxidkonzentrationen zeigen unterhalb 1000 Meter in der Grenzschicht hohe Werte über 5 ppb. Darüber sinken die Werte auf 3 ppb, um bei 3 km erneut für einige hundert Meter auf 4,5 ppb anzusteigen. Dieser kurzfristige Anstieg wiederholt sich in 6 km Höhe. Abgesehen von diesen Ausnahmen nehmen die Stickoxidkonzentrationen auch oberhalb der Tropopause mit der Höhe ab.

Da einzig die Stickoxidkonzentrationen im Verlauf des Vertikalprofils zweimal einen deutlichen Anstieg aufweisen, liegt die Vermutung nahe, dass konvektive Prozesse aus der Grenzschicht nicht die Ursache sein können. In diesem Fall zeigte auch das Kohlenmonoxid erhöhte Werte. Intrusionen aus der Stratosphäre würden mit erhöhten Ozonkonzentrationen einhergehen.

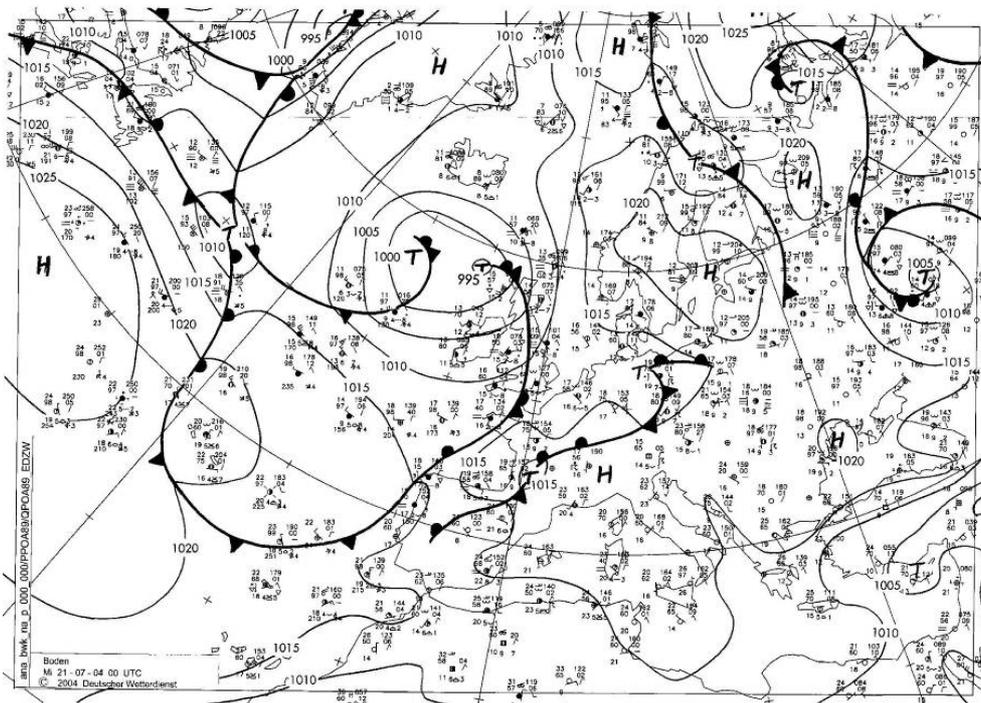
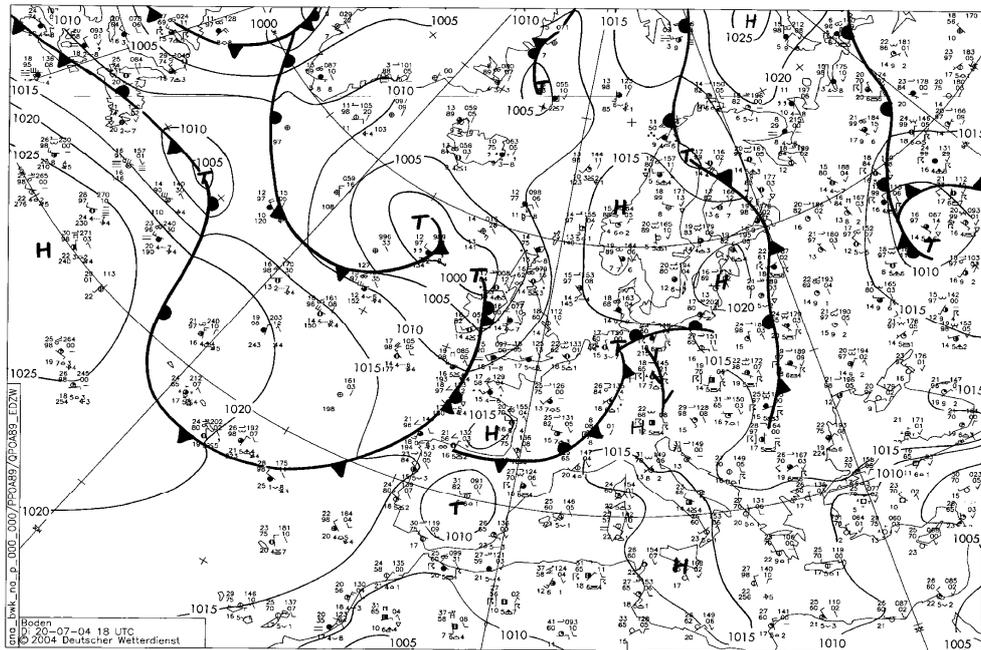
Eine weitere Quelle für hohe Stickoxidkonzentrationen sind Blitze. Zur Dokumentation der Gewittertätigkeit im Raum Frankfurt wurden Bodendruckkarten des Deutschen Wetterdienstes für Mitteleuropa ausgewertet.

Die Bodendruckkarten in Abbildung 4.8a und 4.8b zeigen den Durchzug einer Kaltfront über Mitteleuropa am 20. Juli, 18:00 UTC bis zum 21. Juli, 00:00 UTC.

Die starke Gewittertätigkeit lässt eindeutig auf eine Quelle der Stickoxide aus Blitzen schließen. Der Verlauf der Temperatur sowie der Ozonkonzentration in den unteren 2000 Metern (Abb. 4.9a und 4.9b) – MOZAIC-Daten des Landeanflugs auf Frankfurt - lässt eine Inversionsschicht in 600 Metern in den frühen Morgenstunden erkennen.

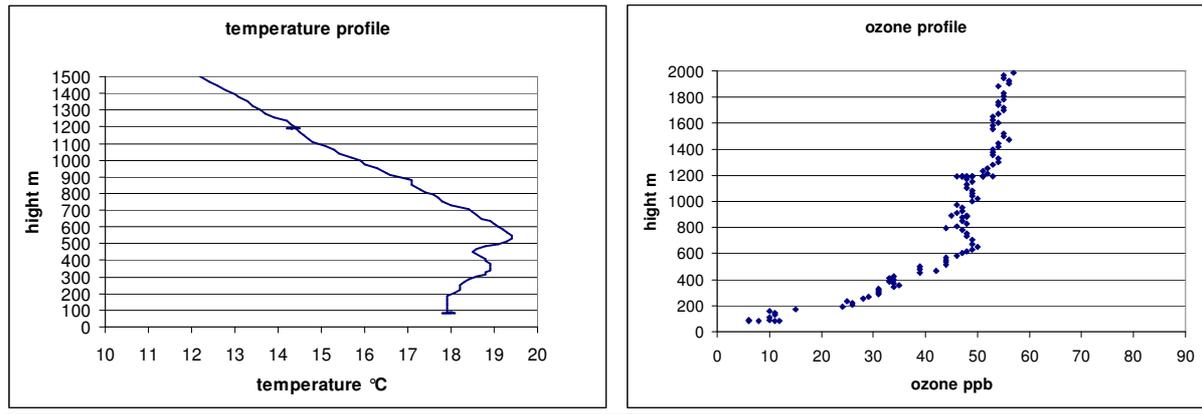
Weiter wurden zwei Landprofile – am 12.07.2004 und am 20.07.2004 - über New York untersucht. Die Vertikalverteilung der Spurenstoffe ist Abb. 4.10 zu entnehmen. Die Profile enthalten Daten vom Beginn des Sinkfluges an. In blau dargestellt sind die Ozonkonzentrationen, in hellblau die Kohlenmonoxid-Konzentrationen und in rot die Stickoxid-Konzentrationen, alle Werte in ppb.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

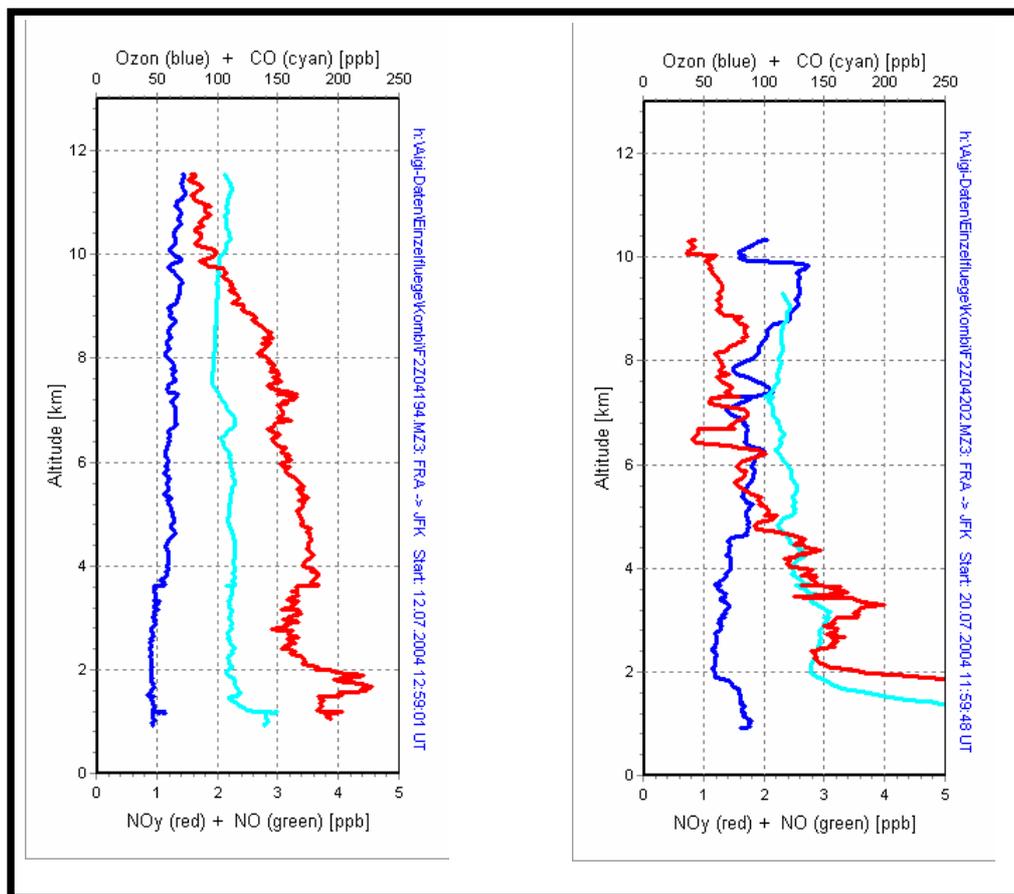


**Abbildung 4.8 a, 4.8 b** Bodendruckkarten des Deutschen Wetterdienstes am 20.07.2004 18:00 UTC und am 21.07.2004 00:00 UTC

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.9 a** Temperaturprofil und **4.9 b** Ozonprofil der unteren Troposphäre beim Landeanflug auf Frankfurt am 21. 07.2004



**Abbildung 4.10** Vertikalprofile der Landeanflüge auf New York, JFK am 12.07.2004, links, und am 20.07.2004, rechts

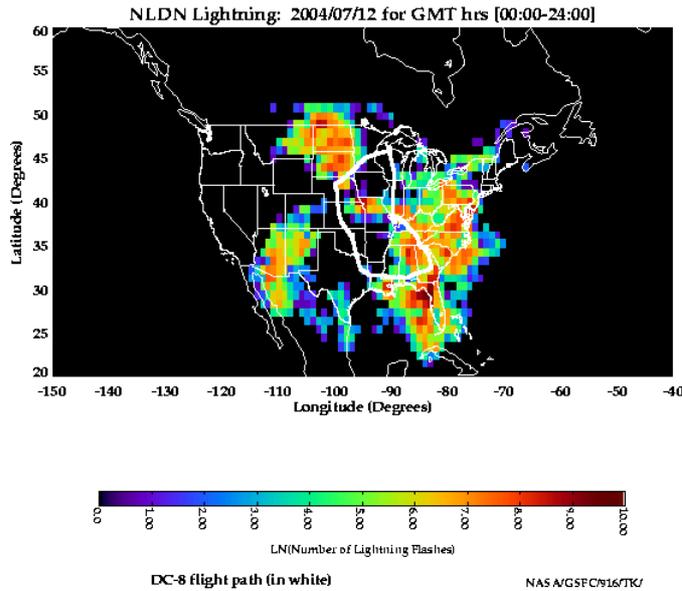
#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Das Profil am 12. Juli 2004 zeigt ähnliche Spurengasverteilungen wie das am 21. Juli in Frankfurt. Die Ozonkonzentrationen sind konstant bei 50 ppb vom Erdboden bis zur Tropopause. Es ist kein Anstieg in 10-12 km zu erkennen, was bedeutet, dass die Tropopause höher liegen muss. Die planetare Grenzschicht ist anhand absinkender CO-Werte im 1000 Meter-Niveau zu erkennen. Um 7000 Meter Höhe befindet sich ein Filament belasteter Luft, welches an erhöhten CO- und NO<sub>y</sub>-Werten zu erkennen ist. Die Stickoxidkonzentrationen steigen zwischen 1500 und 2000 Metern sprunghaft von 3,5 auf 4,5 ppb an und sinken ab 2500 Meter wieder unter 3,5 ab. Zwischen 4000 und 6000 Metern sind ebenfalls ansteigende Werte entgegen der allgemein absinkenden Tendenz mit der Höhe zu verzeichnen.

Zur Klärung der Frage, ob auch in diesem Fall Blitze die Quelle der erhöhten Stickoxidkonzentrationen sind, wurde der bereits erwähnte Blitzdatensatz der NASA, welcher im Rahmen der Feldkampagne INTEX 2004 von der Firma Vaisala gewonnen wurde, zur Auswertung verwendet. Die Daten sind flächendeckend für die USA in sechsständiger Auflösung in 1 Grad Länge mal Breite-Rastern vorhanden und liefern Informationen über die Anzahl der Blitze pro Rasterzelle.

Am 12. Juli 2004 zur Zeit der Landung in New York zwischen 18:00 und 24:00 UTC herrschte über der Ostküste der USA intensive Gewittertätigkeit, dargestellt in Abb. 4.11. In den umliegenden Gitterfeldern des Flughafens wurden mehrere hundert, teilweise weit über tausend Blitze gezählt. Auch diese Analyse bestätigt einen Zusammenhang zwischen hohen Stickoxidkonzentrationen in der mittleren Troposphäre und Gewittertätigkeit.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



Beginn des Landeanfluges	JFK Flughafen
41,8°N	40.65°N
71,58°W	73.77°W

Anzahl der Blitze pro Rasterzelle:

39,5°N;75,5°W: 8784

39,5°N;76,5°W: 1412

40,5°N;79,5°W: 386

40,5°N;78,5°W: 493

40,5°N;77,5°W: 400

40,5°N;76,5°W: 35

40,5°N;75,5°W: 33

grid:1°x1°

**Abbildung 4.11** Blitzvorkommen am 12.07.2004 über den USA, Anzahl der Blitze pro Rasterzelle in 1°x1° Auflösung, Flugroute der DC-8 in weiß. Quelle: INTEX-Feldkampagne: INTEX-NA (INtercontinental chemical Transport EXperiment - North America), im Auftrag der NASA, URL: <http://croc.gsfc.nasa.gov/intex/> 04.07.2005. Freundliche Genehmigung durch Dr. K. Pickering, Goddard Space Flight Centre, Maryland

Das zweite untersuchte Profil eines Landeanflugs auf New York wurde am 20. Juli 2004 gewonnen, dargestellt in Abb. 4.10, rechts. Die vertikale Ozonverteilung zeigt starke Fluktuationen und erreicht in der oberen Troposphäre fast 150 ppb. Ozon (>70 ppb)-, Kohlenmonoxid (250 ppb)- und Stickoxidkonzentrationen (5 ppb) sind unterhalb der Grenzschicht bei 2 km deutlich erhöht. Gleichsam erhöhte Ozon- und Kohlenmonoxidkonzentrationen in der Grenzschicht fanden auch Kalabokas et al. (2007) für Fallbeispiele anhand von Vertikalprofilen. Bis etwa 5000 Meter Höhe reichen die Luftmassen mit erhöhten Werten. Im weiteren Vertikalverlauf sinken die Stickoxidkonzentrationen auf 1 bis 2 ppb ab.

Zur Untersuchung der meteorologischen Situation an diesem Tag wurden die INTEX-Daten sowie die ausgehende langwellige Strahlung (Outgoing Longwave Radiation, OLR), ein Produkt des Climate Diagnostic Centers (CDC) der NOAA verwendet. Der

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

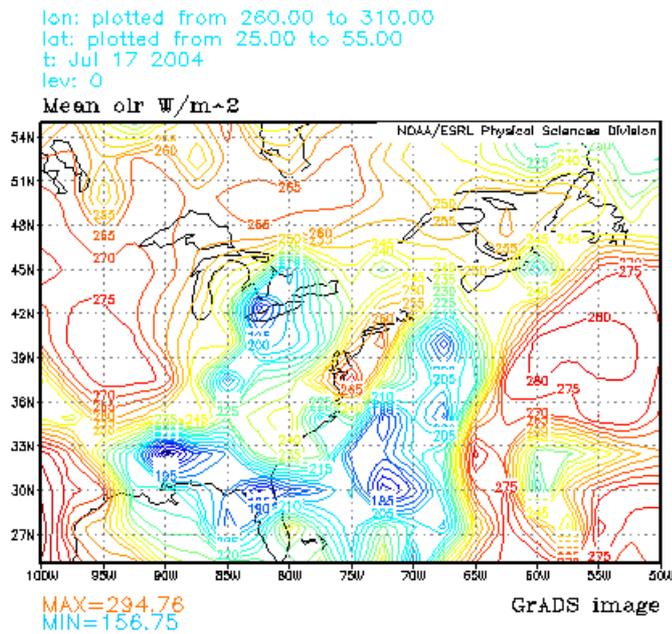
INTEX-Datensatz zeigt keinerlei Gewittertätigkeit an der Ostküste der USA am 20. Juli 2004.

Die ausgehende langwellige Strahlung kann als Tagesmittel in  $W/m^2$  für frei wählbare Regionen auf der Homepage des Earth System Research Laboratory der NOAA <http://www.cdc.noaa.gov> visualisiert werden (vgl. Abb. 4.12a-d).

Die Reihe der Bilder vom 17. bis 20. Juli 2004 (Abb. 4.12 a-d) zeigt sehr anschaulich den Durchzug eines meridional verlaufenden Frontensystems vom kontinentalen Festland zur Küste hin. Am 18. Juli befindet es sich über New York und der Ostküste. Zur Zeit des Landeanflugs auf New York am 20. Juli liegt das System bereits über dem Atlantik. Das bedeutet, dass zu diesem Zeitpunkt keine an eine Kaltfront gebundene Gewittertätigkeit das Wettergeschehen beeinflussen, die Atmosphäre hingegen aufgrund des vorhergehenden Frontendurchzugs stark labilisiert und gut durchmischt wurde. Dies erklärt das Auftreten hoher Stickoxidkonzentrationen verbunden mit hohen Kohlenmonoxidwerten und lässt auf gleiche Quellen unterhalb der Grenzschicht schließen. Diese sind durch konvektiven Transport bis in die mittlere Troposphäre transportiert worden. Ab 8 km Höhe steigen die Ozonkonzentrationen von etwa 70 bis auf 130 ppb an. In 10 km Höhe gehen sie wieder auf 70 ppb zurück. Diese Erhöhung kann auf photochemische Produktion durch konvektiv in die freie Troposphäre transportierte Vorläufersubstanzen  $NO_y$  und CO zurückgeführt werden (vgl. Heald et al. 2003, Choi et al. 2005 und Pickering et al. 1992). Weiterhin kommt ein Eintrag ozonreicher Luftmassen aus der Stratosphäre in Frage. Thompson et al (2007) beziffern den Einfluss dieser beiden Prozesse auf die Bilanz der troposphärischen Ozonsäule über Nordamerika im Sommer 2004 auf jeweils 25% (Thompson et al. 2007).

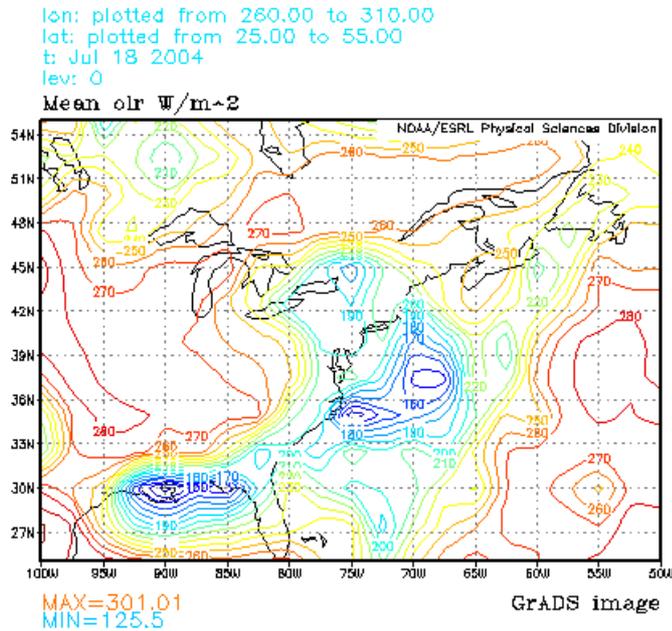
Die Bilderserie vom 09. Juli bis zum 12. Juli (Abb. 4.12 e-h) zeigt über den Verlauf von vier Tagen immer wieder die lokale Entwicklung intensiver Gewitterzellen und kleiner konvektiver Tiefdruckzellen. Sie sind an den klar umgrenzten Gebieten niedriger OLR zu erkennen. Hier haben sich lokal starke Gewitter entladen. Die Tiefdruckzelle am 12.07.2004 über New York ist klar erkennbar.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildungen 4.12 a** Ausgehende langwellige Strahlung (outgoing longwave radiation, OLR) in W/m<sup>2</sup> für den 17.07.2004 über der Ostküste der USA, URL:

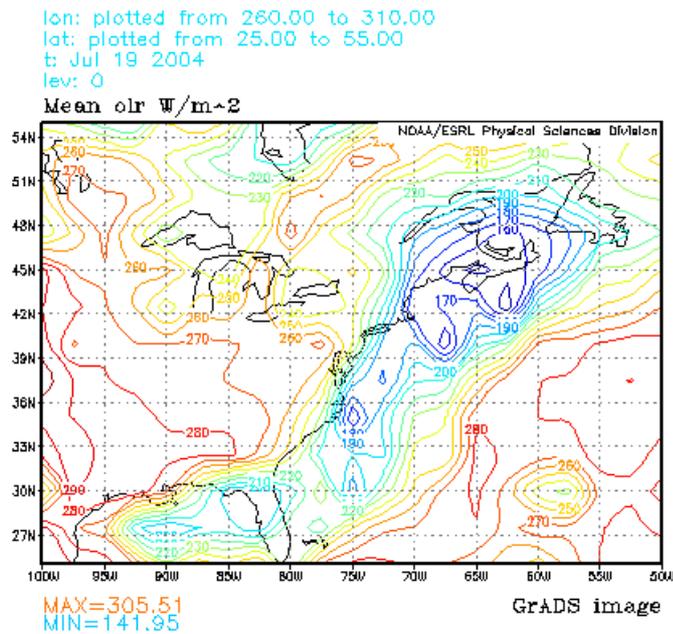
<http://www.cdc.noaa.gov>



**Abbildungen 4.12 b** Ausgehende langwellige Strahlung (outgoing longwave radiation, OLR) in W/m<sup>2</sup> für den 18.07.2004 über der Ostküste der USA, URL:

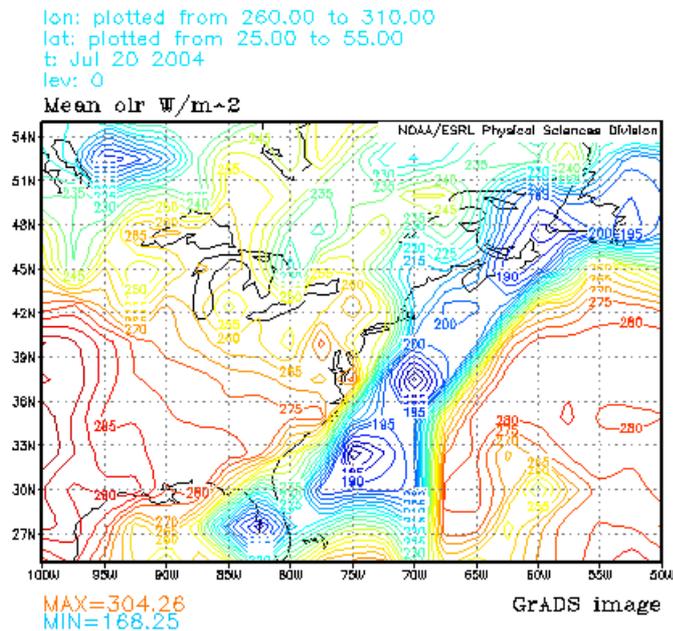
<http://www.cdc.noaa.gov>

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildungen 4.12 c** Ausgehende langwellige Strahlung (outgoing longwave radiation, OLR) in W/m<sup>2</sup> für den 19.07.2004 über der Ostküste der USA, URL:

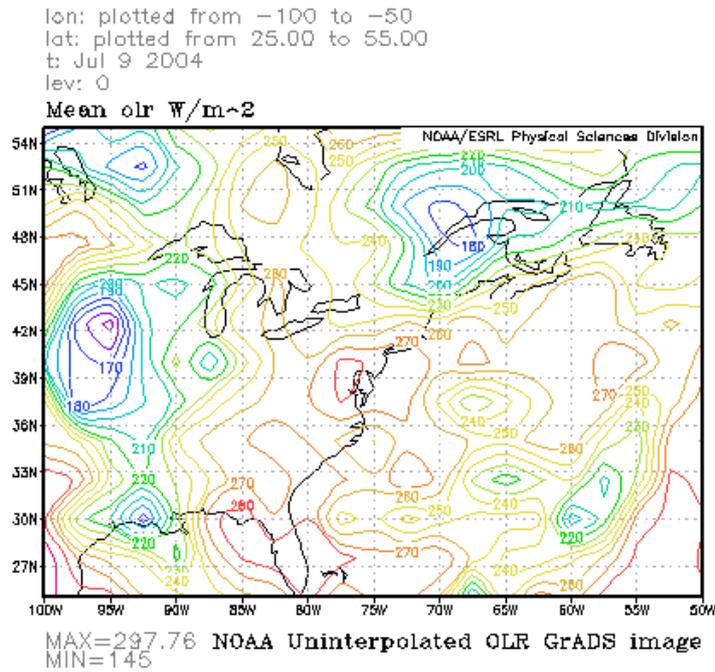
<http://www.cdc.noaa.gov>



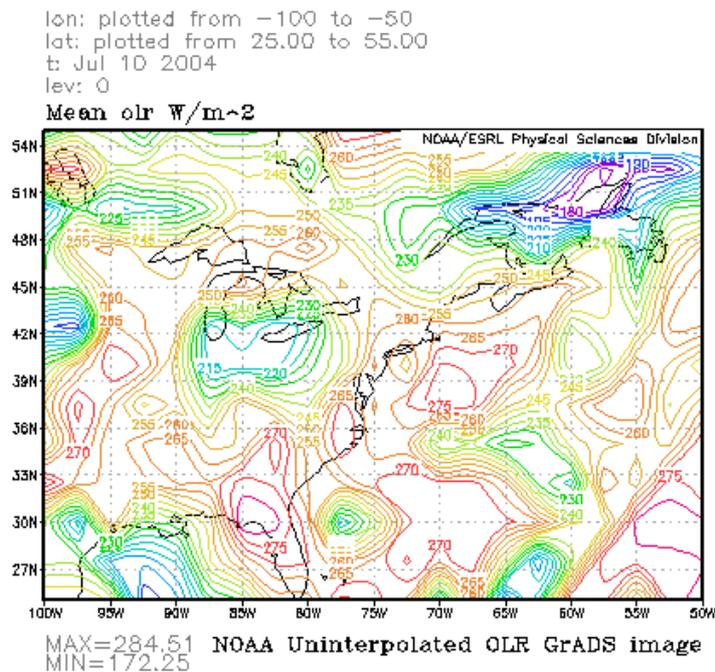
**Abbildungen 4.12 d** Ausgehende langwellige Strahlung (outgoing longwave radiation, OLR) in W/m<sup>2</sup> für den 20.07.2004 über der Ostküste der USA, URL:

<http://www.cdc.noaa.gov>

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildungen 4.12 e** Ausgehende langwellige Strahlung (outgoing longwave radiation, OLR) in W/m<sup>2</sup> für den 09. bis 12.07.2004 über der Ostküste der USA, URL: <http://www.cdc.noaa.gov>

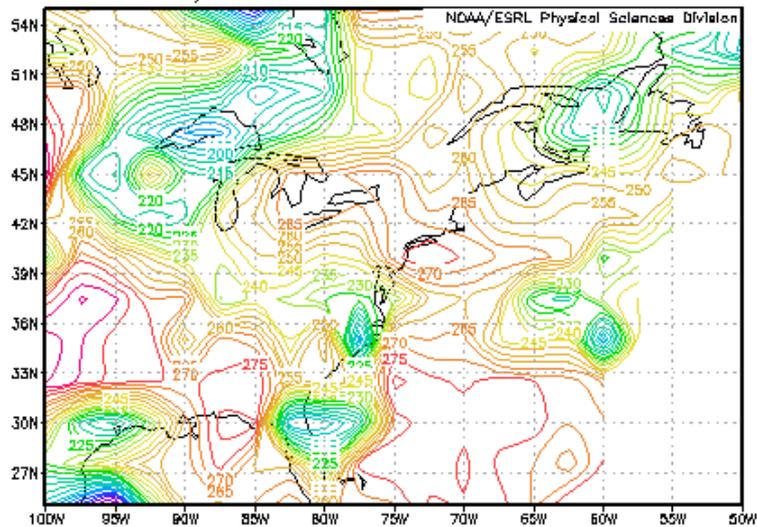


**Abbildungen 4.12 f** Ausgehende langwellige Strahlung (outgoing longwave radiation, OLR) in W/m<sup>2</sup> für den 09. bis 12.07.2004 über der Ostküste der USA, URL: <http://www.cdc.noaa.gov>

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

lon: plotted from -100 to -50  
lat: plotted from 25.00 to 55.00  
t: Jul 11 2004  
lev: 0

Mean olr W/m<sup>2</sup>



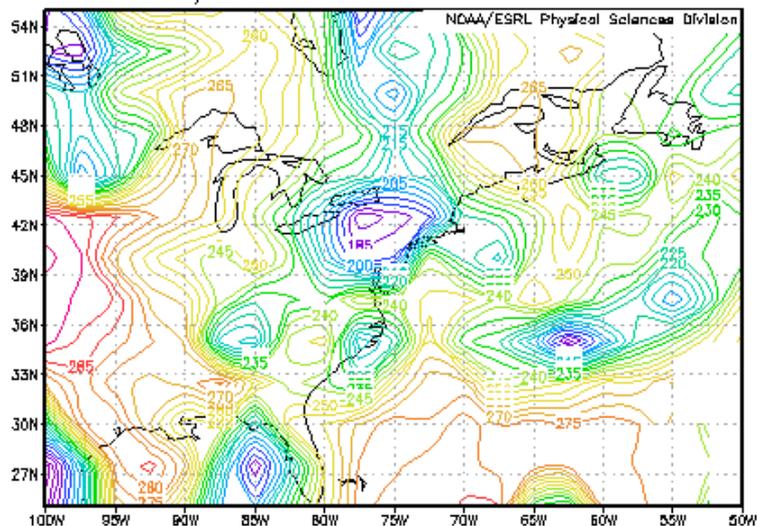
MAX=293.51 NOAA Uninterpolated OLR GrADS image  
MIN=149

**Abbildungen 4.12 g** Ausgehende langwellige Strahlung (outgoing longwave radiation, OLR) in W/m<sup>2</sup> für den 09. bis 12.07.2004 über der Ostküste der USA, URL:

<http://www.cdc.noaa.gov>

lon: plotted from -100 to -50  
lat: plotted from 25.00 to 55.00  
t: Jul 12 2004  
lev: 0

Mean olr W/m<sup>2</sup>



MAX=302.01 NOAA Uninterpolated OLR GrADS image  
MIN=166.5

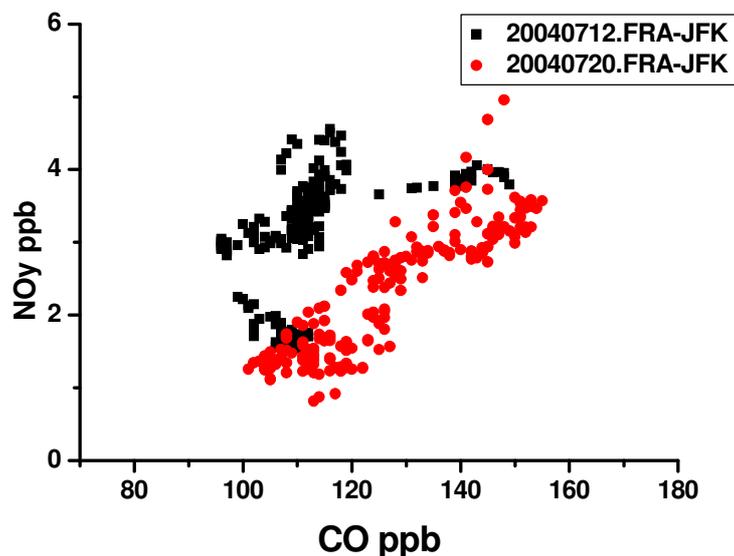
**Abbildungen 4.12 e-h** Ausgehende langwellige Strahlung (outgoing longwave radiation, OLR) in W/m<sup>2</sup> für den 09. bis 12.07.2004 über der Ostküste der USA, URL: <http://www.cdc.noaa.gov>

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

In Abb. 4.13 sind die Verhältnisse von  $\text{NO}_y$  zu CO der beiden Landprofile über New York gegeneinander aufgetragen. Es zeigt sich auch darin dieselbe Ausprägung wie in Abb. 4.6b – einmal im Zusammenhang mit Blitzen und einmal ohne den Einfluss von Blitzen mit gleichzeitig erhöhten Kohlenmonoxidkonzentrationen. Beim Landeanflug am 12. Juli sind hohe  $\text{NO}_y$ -Konzentrationen zu erkennen.  $\text{NO}_y$  und CO sind schwach korreliert mit  $r=0.47$ . Bei jenem am 20. Juli sind  $\text{NO}_y$  und CO gleichermaßen erhöht mit einem Korrelationskoeffizienten von  $r=0.95$ . Beide Korrelationskoeffizienten sind signifikant. Dies zeigt der T-Test (Kreyszik 1988:316):

$$t_0 = r \sqrt{\frac{n-2}{1-r^2}} \quad [38]$$

Die berechnete Prüfgröße  $t_0$  muss größer sein als der kritische Wert einer t-Verteilung bei einem Signifikanzniveau von 99% und  $n-2$  Freiheitsgraden. Der kritische Tabellenwert beträgt für beide Stichproben 2,35 (Kreyszik 1988:435). Die Korrelation am 12.07.2004 ist mit einer Prüfgröße von  $t_0 = 7,53$  eindeutig signifikant. Die hohe Korrelation am 20.07.2004 ist noch weitaus signifikanter mit einer Prüfgröße  $t_0$  von 63.16.



**Abbildung 4.13** Verhältnis von Stickoxiden zu Kohlenmonoxid über der Ostküste der USA am 12.07.2004 (schwarz,  $r=0.47$ ) und am 20.07.2004 (rot,  $r=0.95$ )

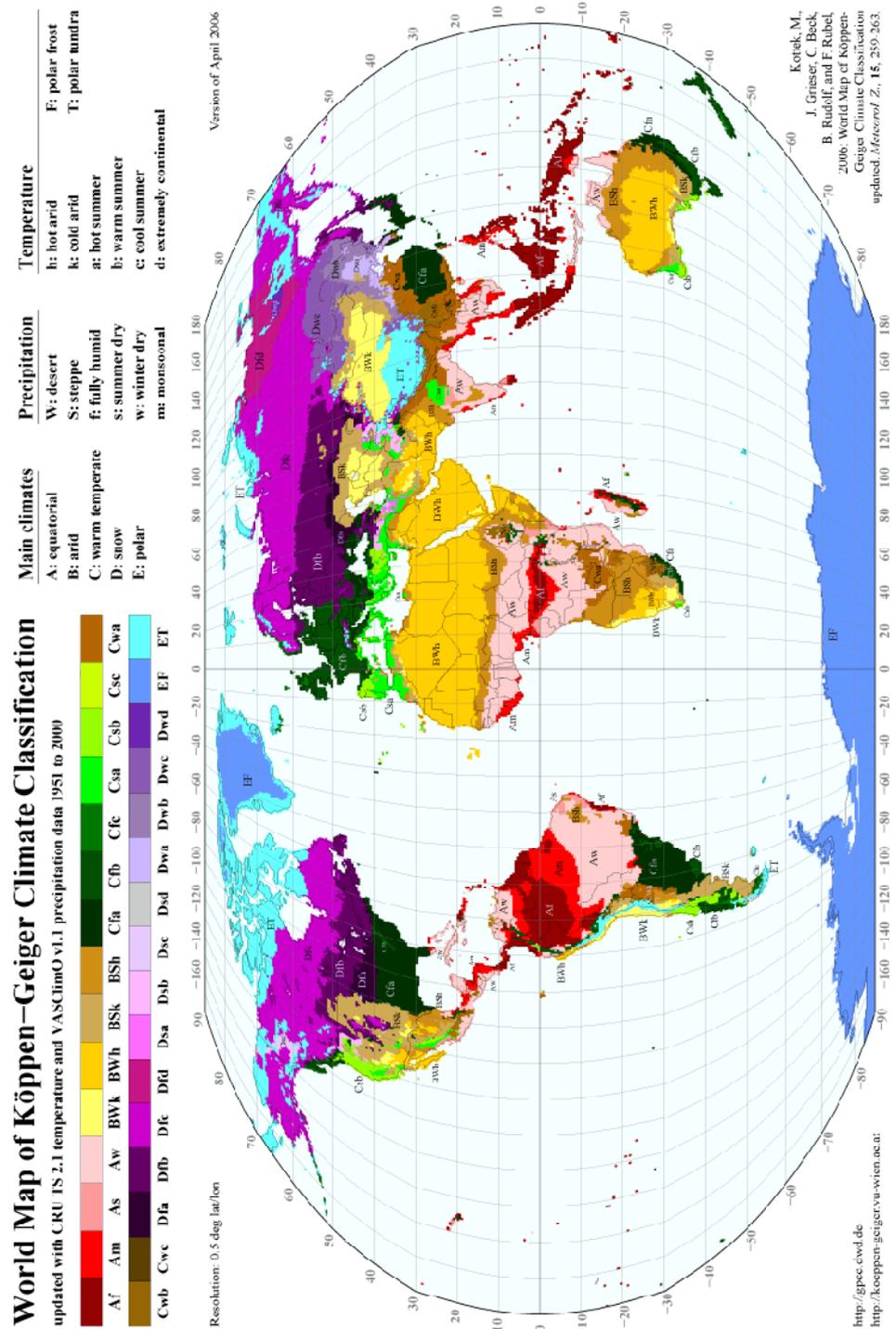
#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

### 4.4 KLIMATOLOGIE DER SPURENGASE IN DER UNTEREN UND MITTLEREN TROPOSPHÄRE

#### 4.4.1 CHARAKTERISIERUNG DER FLUGHÄFEN

Anhand der Untersuchung einzelner Datenprofile lässt sich gut der Einfluss von synoptischen Situationen aufzeigen. Eine Analyse jedes einzelnen Fluges ließe unter Zuhilfenahme von Trajektorienrechnungen eine eindeutige Bestimmung der Herkunft der Luftmassen und deren Spurengasgehalt zu. Soll allerdings eine großräumige Klimatologie der Spurengase unter Berücksichtigung der durch MOZAIC verfügbaren Datendichte analysiert werden, ist es hilfreich, den durch Messdaten abgedeckten Raum in geographisch sinnvolle regionale Einheiten zu teilen, um synoptische Charakteristika innerhalb der allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre zusammenzufassen. Um allgemeinen Zirkulationsmustern gerecht zu werden, wurden Regionen auf Basis der Klimaklassifikation nach Köppen und Geiger gebildet. Diese Klassifikation wurde 1936 von Wladimir Köppen entworfen, 1961 von Rudolf Geiger und zuletzt im Jahr 2006 von Kotték et al. aktualisiert und ergänzt (vgl. Abb. 4.14). Sie basiert auf Temperaturschwellenwerten (Klassen A, C, D, E) und Niederschlagsschwellenwerten (Klasse B). Es werden mit den tropischen Klimaten, den Trockenklimaten, den gemäßigten Klimaten, den Schnee- und Eisklimaten 5 Hauptklassen und 8 bzw. weitere 6 Unterklassen unterschieden. Kotték et al. haben 2006 eine aktualisierte Version der Köppen und Geiger Karte entwickelt auf Basis von Temperatur- und Niederschlagsdaten für den Zeitraum 1951 bis 2000 in einer Auflösung von 0.5° Längen- und Breitengraden. Zugrunde liegen die neuesten Datensätze der Climatic Research Unit (CRU) der Universität von East Anglia und des Weltzentrums für Niederschlagsklimatologie (WZN) am Deutschen Wetterdienst (Kotték et al. 2006). Peel et al. lieferten 2007 eine weitere Aktualisierung unter Verwendung der Stationsdaten seit Beginn ihrer Datenerfassung. Jede Variable wurde individuell interpoliert mit einer Auflösung von 0.1°Breite mal 0.1°Länge (Peel et al. 2007). Die Zugehörigkeit der Flughäfen zu den Klimazonen bleibt unverändert in den genannten jüngeren Arbeiten. Die Flughäfen wurden den entsprechenden Klassen zugeteilt (Tabelle 4.1).

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.14** Karte der Klimazonen nach Wladimir Köppen 1936 und Rudolf Geiger 1961, ergänzt und aktualisiert durch Kottek et al. 2006. Quelle: Kottek, M., J. Grieser, C. Beck, B. Rudolf, and F. Rubel, 2006: [World Map of the Köppen-Geiger climate classification updated](http://koeppen-geiger.vu-wien.ac.at). *Meteorol. Z.*, **15**, 259-263. DOI: [10.1127/0941-2948/2006/0130](https://doi.org/10.1127/0941-2948/2006/0130)

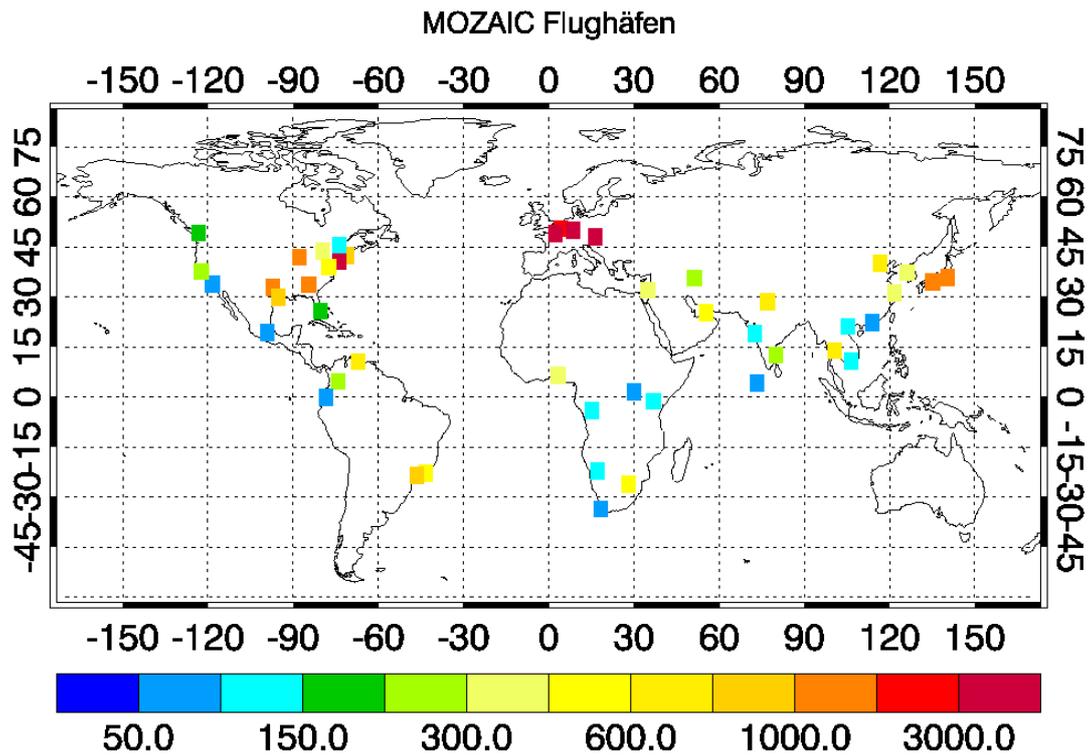
#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

**Tabelle 4.1** Einteilung der MOZAIC-Flughäfen in die Klimazonen nach Köppen 1935 und Geiger 1961, aktualisiert durch Kottek 2006

<b>Af:</b>	Rio de Janeiro
<b>Am:</b>	Lagos, Male
<b>Aw:</b>	Bangkok, Bogota, Brazzaville, Caracas, Chennai, Ho Chi Minh City, Kigali, Miami, Mumbai
<b>BWh:</b>	Abu Dhabi, Cairo, Dubai, Kuwait, Windhoek
<b>Cfa:</b>	Atlanta, Boston, Cincinnati, Dallas, Houston, New York, Osaka, Sao Paolo, Seoul, Shanghai, Tokyo, Washington
<b>Cfb:</b>	Brussels, Cologne, Frankfurt, Munich, Paris, Vienna
<b>Csa:</b>	Teheran, Tel Aviv
<b>Csb:</b>	Capetown, Los Angeles, San Francisco, Vancouver
<b>Cwa:</b>	Delhi, Hanoi, Hongkong
<b>Cwb:</b>	Johannesburg, Mexico City, Nairobi, Quito
<b>Dfa:</b>	Chicago, Detroit
<b>Dfb:</b>	Detroit, Montreal, Toronto
<b>Dwa:</b>	Beijing

In Abb. 4.15 sind die MOZAIC-Flughäfen aus Tab. 4.1 mit der Anzahl der gewonnenen Vertikalprofile dargestellt. Die größte Anzahl weisen die Drehscheiben der europäischen Fluggesellschaften, Frankfurt, Brüssel, Paris und Wien auf. Im Osten der USA und in Ostasien sind ebenfalls mehr als tausend Profile je Flughafen verfügbar. Die tropischen Regionen in Südamerika, Afrika und Südafrika sowie Süd- und Südostasien weisen deutlich weniger Profile auf, sind aber mit mehr als 50 pro Flughafen noch statistisch repräsentativ (vgl. Logan 1999).

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abb. 4.15** Globale Verteilung der MOZAIC-Flughäfen mit jeweils mehr als 50 Vertikal-Profilen

Der bodennahe Bereich der Atmosphäre wird in erheblichem Maß durch die Orographie beeinflusst. Die Hauptanströmrichtung des Windes wird aufgrund der Reibung abgelenkt und kanalisiert. Daher ist es für die Auswertungen wichtig, die Topographie des Flughafens und dessen Lage zur Stadt bzw. näher gelegenen Agglomeration zu beachten.

Für eine Übersicht der lokalen Charakteristika wurden 50 MOZAIC-Flughäfen, die alle mehr als 50 Vertikalprofile aufweisen, mithilfe des Google-Produktes Google Earth, Version 2006, in Bezug auf die Topographie, Küstennähe und die Lage zur Stadt stichpunktartig beschrieben. Die Informationen wurden tabellarisch festgehalten und sind Tabelle 4.2 zu entnehmen.

Wichtige Metadaten sind ebenfalls die Start- und Landezeiten. Der Aspekt, zu welcher Tageszeit die Profile gewonnen wurden, ist entscheidend für die Höhe der planetaren Grenzschicht, die photochemische Aktivität der Atmosphäre und die Ausbildung von lokalen Windsystemen.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

##### 4.4.2 SAISONALE VERTIKALPROFILE VON $O_3$ , $H_2O$ , $NO_y$ UND $CO$

In den folgenden beiden Kapiteln wird die Auswertung der Vertikalprofile von Ozon, Kohlenmonoxid, Stickoxiden und relativer Feuchte für die Klimazonen Cfa, Cfb und Aw für einige Flughäfen exemplarisch dargestellt.

Median, 5-, 25-, 75-, und 95-Perzentile wurden für die vier Jahreszeiten Frühling (MAM), Sommer (JJA), Herbst (SON) und Winter (DJF) mithilfe einer IDL-Routine (Thomas et al. in preparation) dargestellt.

Zunächst wurde ein  $2^\circ \times 2^\circ$ -Netz um die jeweiligen Koordinaten des Flughafens festgelegt. Als Höhenbegrenzung wurden 13 km festgelegt. In diesem Bereich wird unter Berücksichtigung der Start- und Landewinkel eine hinreichend hohe Datendichte abgedeckt, ohne dabei die Daten benachbarter Flughäfen in der Auswertung mit zu erfassen. Die Daten wurden jeweils über 500 Höhenmeter gemittelt.

Basierend auf der vorangegangenen Einteilung der Flughäfen in Klimaklassen wurden die Flughäfen einer Klimaklasse für die Auswertung der Profile zusammengefasst. Als Beispiel werden hier für die Klimaklasse Cfa die Ozonprofile vorgestellt (Abb. 4.16a und b).

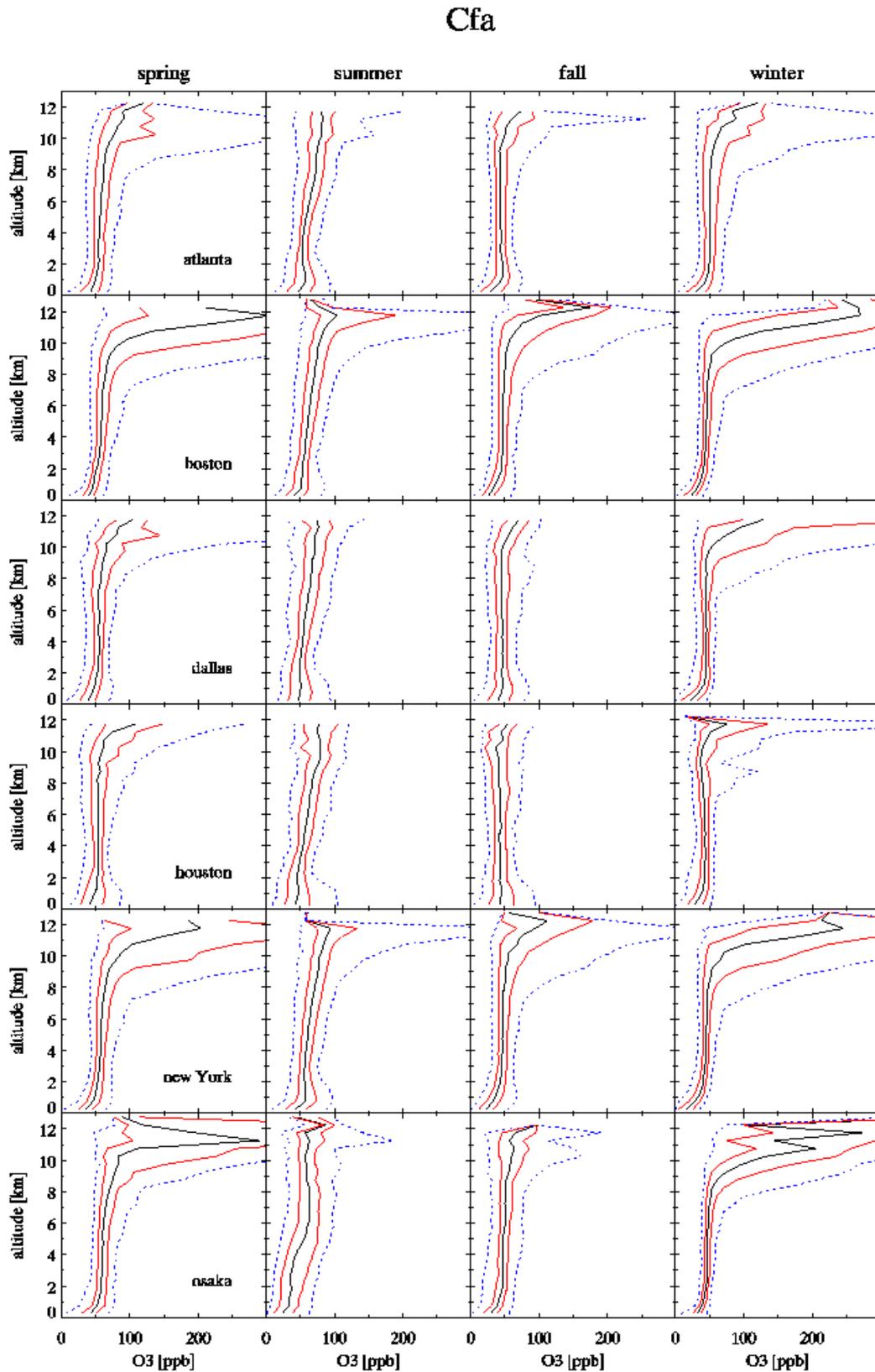
Nach Logan (1999) sind mindestens vier mögliche Fehlerquellen bei der Interpretation von Ozonprofilen zu beachten: Messfehler, Variabilität von Ozon an verschiedenen Flughäfen, die entweder von den Messdaten erfasst wird oder nicht, die Variabilität an den Flughäfen an sich im Hinblick auf deren Verteilung über geographische Breiten von den Tropen bis in die hohen Mittelbreiten sowie die Annahme, dass die Flughafenprofile repräsentativ für die Region sind.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

**Tabelle 4.2** Geographische Charakteristika der Flughäfen/Lage zur Stadt

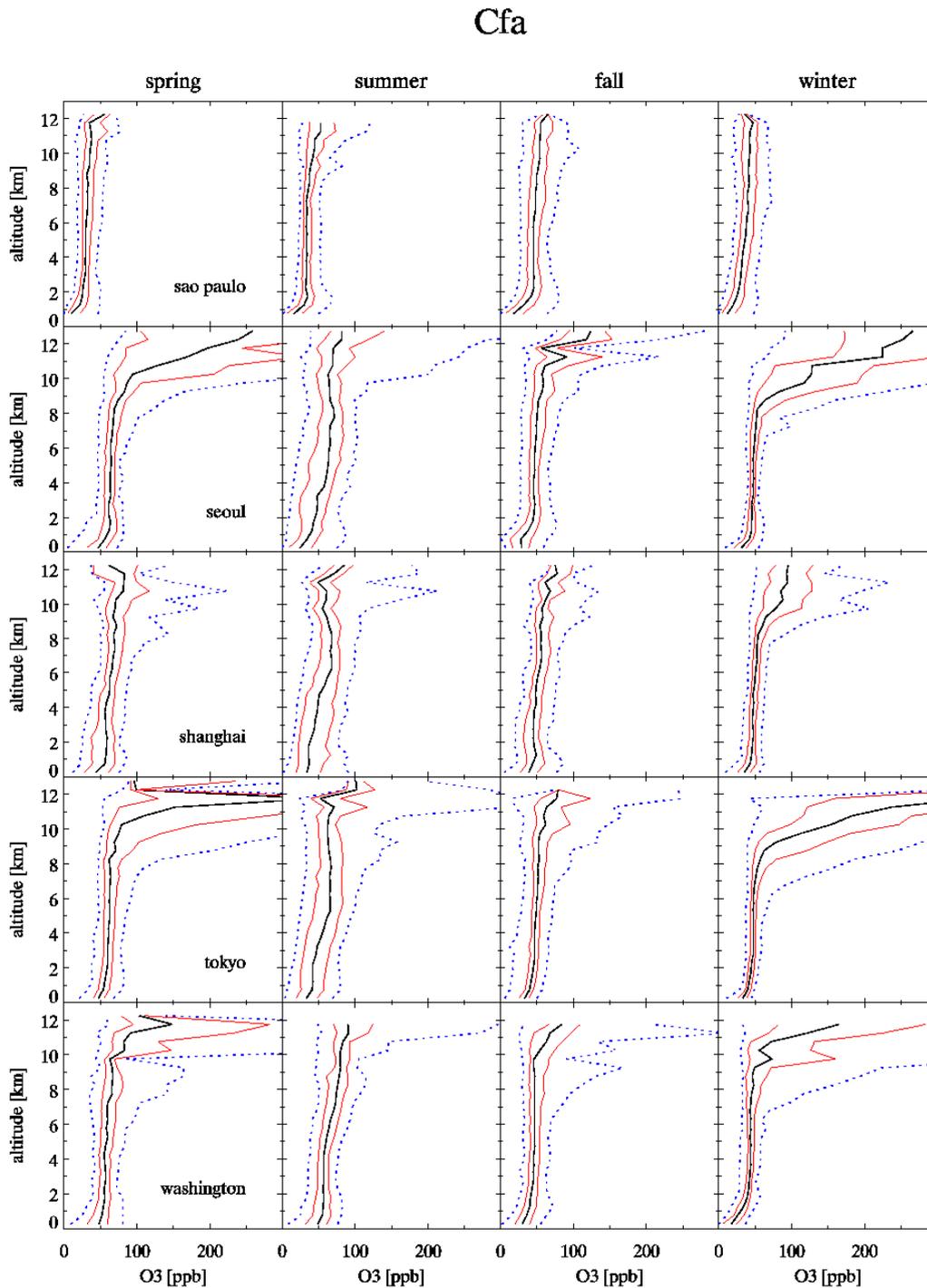
Flughafen	Position des Flughafens zur Stadt und geographische Charakteristika
Abu Dhabi	E von Stadt, Golfküste in NW,W
Atlanta	S, plain, Appalachen
Bangkok	NE, flaches Becken, 40 km n v. Meer
Beijing	N/NE, Berge im NW
Bogota	Hochland, ITCZ
Boston	E-Rand am Meer
Brazzaville	W (innerhalb) der Stadt, 300m-Relief, Congotal von NE-SW
Brussels	NE der Stadt
Cairo	E/NE der Stadt, Beginn Nildelta, Berge in SE,SW
Capetown	NE-Stadt, Wasser im W, Siedlungen im E, Berge im SW
Caracas	N der Stadt, am Meer, durch Berge von Stadt getrennt
Chennai	SW der Stadt landeinwärts
Chicago	NW der Stadt, Lake Michigan im E
Cincinnati	SW der Stadt, Midwestern, hügelig, kontinental
Cologne	SE der Stadt, Königsforst in NW und S, im E bergig
Dallas	NW der Stadt
Delhi	SW der Stadt, flaches Gelände
Detroit	SW der Stadt, Lake Erie im SE, hügelig
Dubai	Küste, SE der Stadt
Frankfurt	SE der Stadt, Maintal zwischen Taunus/Wetterau und Odenwald
Hanoi	N, Berge im W, N, E, Meer im SE
Ho Chi Minh City	N-Rand der Stadt
Hongkong	Nordzunge einer Insel
Houston	N der Stadt
Johannesburg	E/NE, weit v Stadt entfernt
Kigali	SE der Stadt
Kuwait	S der Stadt, Öfelder im NW
Lagos	N/NW, Wasser im S, E, Küste
Los Angeles	W der Stadt, direkt an Küste, Stadt v Bergen umrahmt
Male	Atoll, Indien im NE
Mexico	E der Stadt, Kessel, nach N offen
Miami	mitten in Stadt, E-> Atlantik
Montreal	SW der Stadt, flaches Gelände
Mumbai	N der Stadt an W-Küste
Munich	NE der Stadt, flach-hügelig
Nairobi	E der Stadt, Hochland, Stadtrand
New York	SW v Long Island, NY im NE
Osaka	N v Kobe und Osaka, Meer im SW, N Berge, NE-Schneise 300-400m
Paris	NE d Stadt, flaches Gelände
Quito	N der Stadt, im W 4000 Berge, sonst Plateau
Rio de Janeiro	NE-Stadt auf Insel, Stadt im W, Meer im S
San Francisco	S-Stadt an Innenküste, S u W Berge, umrundet v Siedlungen
Sao Paulo	NE-Stadt, S-küste, umrahmt v hohen Bergen
Seoul	W der Stadt, im W Küste
Shanghai	SW der Stadt auf Landzunge
Teheran	W der Stadt, Plateau, Berge im N, E
Tel Aviv	SE der Stadt, Festland, Berge im E Wasser im S, Berge im E, NSW der Stadt
Tokyo	Wasser im S, Berge im E, N
Toronto	SW der Stadt, SE Ontariosee
Vancouver	SW der Stadt, an W-Küste leeseitig v VI
Vienna	SE der Stadt, SW Berge
Washington	W/SW der Agglomeration Wash/Balt
Windhoek	Plateau, 1700 Meter, E d Stadt hinter Gebirgszügen (+300m) , weit außerhalb

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



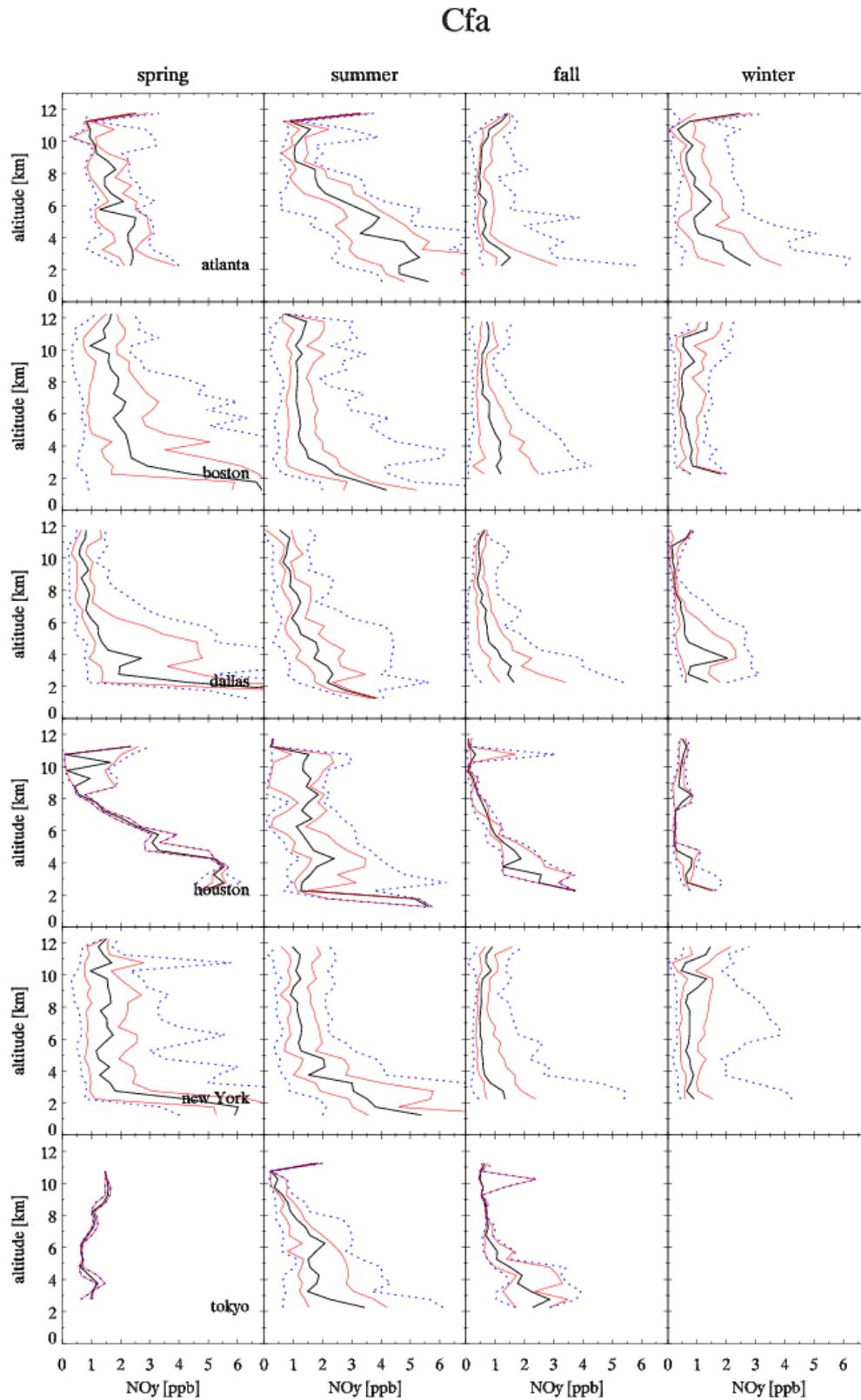
**Abbildung 4.16a** Vertikalprofile von Ozon der Flughäfen der Klimazone Cfa, schwarz: Median, rot 25 bzw. 75% Quartile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.16b** Vertikalprofile von Ozon der Flughäfen der Klimazone Cfa, schwarz: Median, rot 25 bzw. 75% Quartile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.17** Vertikalprofile der Stickoxide der Klimazone Cfa schwarz: Median, rot 25 bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Im Frühjahr und Winter sind in den Profilen der in den höheren Breiten liegenden Flughäfen Boston, New York, Tokyo und Seoul stark erhöhte Ozonkonzentrationen von bis zu 300 ppb in einer Höhe von etwa 10 Kilometern zu erkennen. Der sprunghafte Anstieg der Ozonkonzentration deutet auf den Übergang zur Stratosphäre hin (Thouret et al. 2006). In den Profilen der in niedrigeren Breiten liegenden Flughäfen Atlanta, Dallas, Houston, Sao Paulo und Shanghai liegt diese Grenze zu den genannten Jahreszeiten höher und ist weit weniger stark ausgeprägt. In den Jahreszeiten Sommer und Herbst ist sie in Reiseflughöhe der Flugzeuge im Umkreis der meisten Flughäfen nicht nachweisbar. Dies steht in guter Übereinstimmung mit Logan (1999), die für die nördlichen Mittelbreiten und hohen Breiten die höchsten Ozonwerte im Frühjahr in 2 km über der Tropopause findet.

Alle Flughäfen der Klimazone Cfa zeigen ein Sommermaximum in der freien Troposphäre. Der markante Anstieg der Ozonkonzentration in etwa 10 km Höhe, wie er in den übrigen Jahreszeiten auftritt, ist nicht festzustellen. Das Phänomen tritt auch über den bereits zu den Schneeklimaten zählenden Flughäfen der Ostküste auf (Abb. A4 im Anhang). Es weist auf eine deutlich angehobene Tropopause über der unter saisonalem Hochdruck liegenden Ostküste hin (vgl. Kap. 2.3). In Kapitel 5 wird dieses Zirkulationsmuster noch weiter spezifiziert und charakterisiert. Damit übereinstimmend finden Thompson et al. (2007) bei Vertikalsondierungen im Sommer 2004 eine „zunehmende Tropopausenhöhe ostwärts zunehmender geographischer Länge“ über dem nordamerikanischen Kontinent.

Die Ozonprofile für Osaka und Tokyo im Winter und Frühjahr (Abb. 4.16a und 4.16b) stimmen gut mit dem Profil für die Japanische Ostküste, gewonnen aus Ozonsondierungen im Februar und März 1994 (PEM-West-B Japan Coast E, Emmons 2000 nach Hoell et al. 1997), überein. Allerdings zeigt der Median in den MOZAIC-Profilen oberhalb 10 km Höhe höhere Werte, über 200 ppb, als derjenige aus den Sondierungsprofilen. In beiden Fällen ist die Streuung in der Tropopausenregion am stärksten (vgl. Emmons et al. 2000). Im Februar und März findet besonders starker Abfluss belasteter Luftmassen vom asiatischen Kontinent Richtung Pazifik statt (Emmons 2000). Damit sind die moderaten Ozonkonzentrationen in der unteren und mittleren Troposphäre zu erklären. Heald et al. (2003) quantifizieren den Abfluss belasteter Luftmassen vom asiatischen Festland über den Pazifik aus Satellitenmessungen - MOPITT - von CO und Ozon. Über

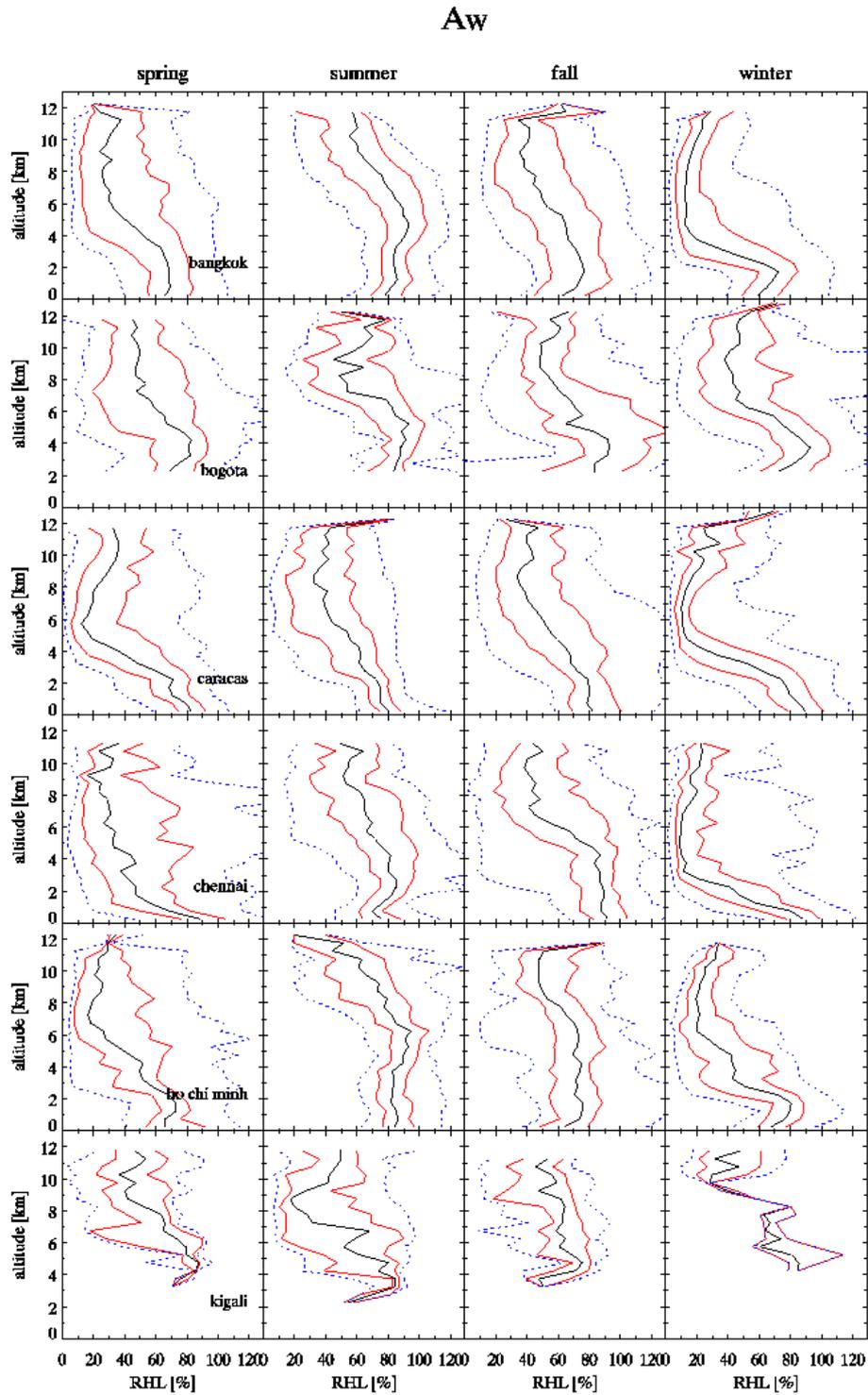
#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Hawaii wurden in den Luftmassen asiatischen Ursprungs erhöhte Ozonwerte gefunden, die auf photochemischer Produktion durch  $\text{NO}_x$  beruhen, welches aus abgebautem PAN (Peroxyacetylnitrat) entstanden ist (Heald et al. 2003). Pickering et al. (1992) zeigen einen Anstieg photochemischer Ozonproduktion in belasteten, durch konvektiven Vertikaltransport angehobene Luftmassen, der regional stark variiert. Insgesamt wird das durch konvektive Prozesse zusätzlich produzierte Ozon auf 30% für die gesamte troposphärische Ozonsäule beziffert - in den ersten 24 Stunden nach dem konvektiven Transport belasteter Luftmassen (Pickering et al. 1992). Die Vertikalprofile für Kohlenmonoxid befinden sich im Anhang (Abb. A2).

Anhand der Profile der relativen Feuchte in Abb. 4.18 lässt sich für die Tropenklimate mit einer Trockenzeit – die von Monsun und Passat beeinflussten Klimate - deutlich die Passatinversion erkennen. In Caracas ist der Passat nach Überströmung der kühleren Ozeanoberfläche von Dezember bis Mai sehr mächtig ausgeprägt, die Inversionsschicht liegt bei 4000 bis 6000 Meter. Das vom Wechsel von Passat und Monsun geprägte Chennai im Süden Indiens weist in den Monaten der Trockenzeit von Dezember bis Februar ebenfalls eine ausgeprägte Inversionsschicht in etwa 3000 Metern Höhe auf, oberhalb derer die relative Feuchte auf Werte um 10 Prozent zurückgeht. In Ho Chi Minh Stadt und Bangkok liegt die Trockenzeit ebenfalls im nordhemisphärischen Winter, allerdings gehen die Werte der relativen Feuchte oberhalb der Passatschicht nicht so markant zurück wie in den vorherigen Beispielen.

Die Vertikalprofile für Ozon der Städte der Klimazone der immerfeuchten Tropen zeigen das ganze Jahr über homogene Konzentrationen um 50 ppb, die sich im Vertikalverlauf kaum ändern. Ein Übergang zur Stratosphäre mit erhöhten  $\text{O}_3$ -Konzentrationen ist nicht zu erkennen. Die Vertikalprofile befinden sich im Anhang (Abb. A1). Auch die Ozonprofile der Städte der sommertrockenen Mittelbreiten weisen große Ähnlichkeiten auf. Nach Kottetk et al. (2006), Abb. 4.14, lassen sie sich in heiße (Csa) und warme (Csb) Sommer unterscheiden. Die Profile der Städte der Klimazone Csb, Capetown, Los Angeles, San Francisco und Vancouver, sind an der tiefer liegenden Tropopause im Sommer zu erkennen. In Los Angeles fallen besonders hohe Ozonkonzentrationen im Sommer in Bodennähe auf. Die Vertikalprofile befinden sich im Anhang (Abb. A5).

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.18** Vertikalprofile der Relativen Feuchte der Flughäfen der Klimazone Aw, schwarz: Median, rot 25% bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

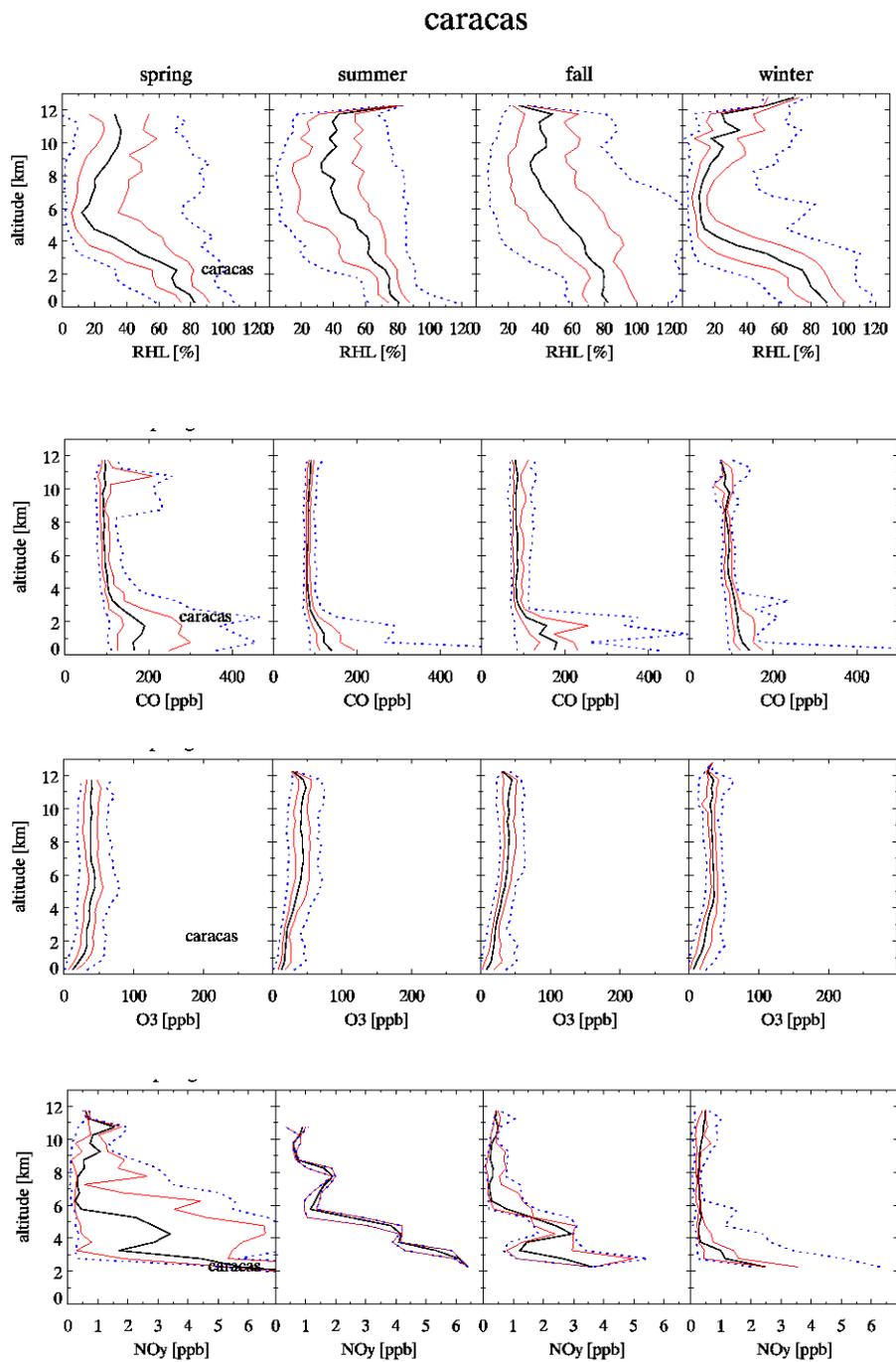
#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

##### 4.4.3 *ABHÄNGIGKEIT DER KONZENTRATION VON O<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O UND CO VON DER WINDRICHTUNG AN DEN FLUGHÄFEN*

Zur Analyse der Verteilung der Windrichtungen in den vier Jahreszeiten wurde die saisonale Häufigkeit der Windrichtung in Windrosen für die unteren 500 Meter über Grund und in einer Höhe von 1250 Metern dargestellt. Diese beiden Höhen sollen den Datenanteil repräsentieren, welcher innerhalb der planetaren Grenzschicht liegt, und zum anderen Daten außerhalb dieser stark von der Bodenreibung beeinflussten Schicht beinhalten, wo die freie Anströmrichtung des Windes vorherrscht. Eingeteilt wurde das Polardiagramm in 15°-Sektoren. Die Häufigkeiten der Windrichtung wurden in der 360°-Windrose über diese 15°-Sektoren gemittelt. Die Diagramme wurden mithilfe der Software Origin erstellt. Die Windrichtung sowie die Windgeschwindigkeit werden von den Flugzeugen gemessen.

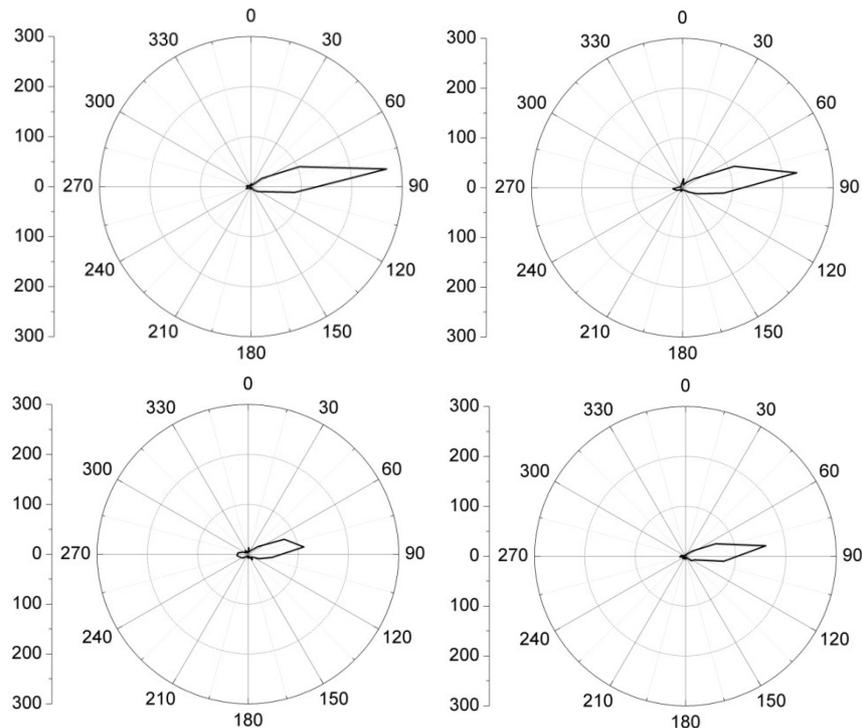
Für jeden Sektor ergeben sich eine mittlere Häufigkeit der auftretenden Windrichtung und ein Mittelwert der Ozon, Wasserdampf bzw. Kohlenmonoxidkonzentration. Auch hier wurde in Jahreszeiten unterteilt. Die Windrosen unterstützen die Auswertung der Vertikalprofile. Sie liefern wertvolle Informationen über den Einfluss der Emissionen der Metropolen auf die im Bereich der Flughäfen gemessenen Spurengaskonzentrationen. Für die Mittelbreiten-Flughäfen New York und Frankfurt als Repräsentanten der Klimaklassen Cfa und Cfb sowie Caracas (Klimazone Aw) als Beispiel eines Tropenflughafens unter Passateinfluss wurden die Vertikalprofile unter Berücksichtigung der Windrosen ausgewertet.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.19** Vertikalprofile der Relativen Feuchte, Kohlenmonoxid, Stickoxide und Ozon für Caracas, schwarz: Median, rot 25 bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.20** Windrosen für Caracas, gemittelte Häufigkeiten in 15°-Sektoren zwischen Erdoberfläche und 500 Meter ü. NN, bezeichnet als 250 Meter

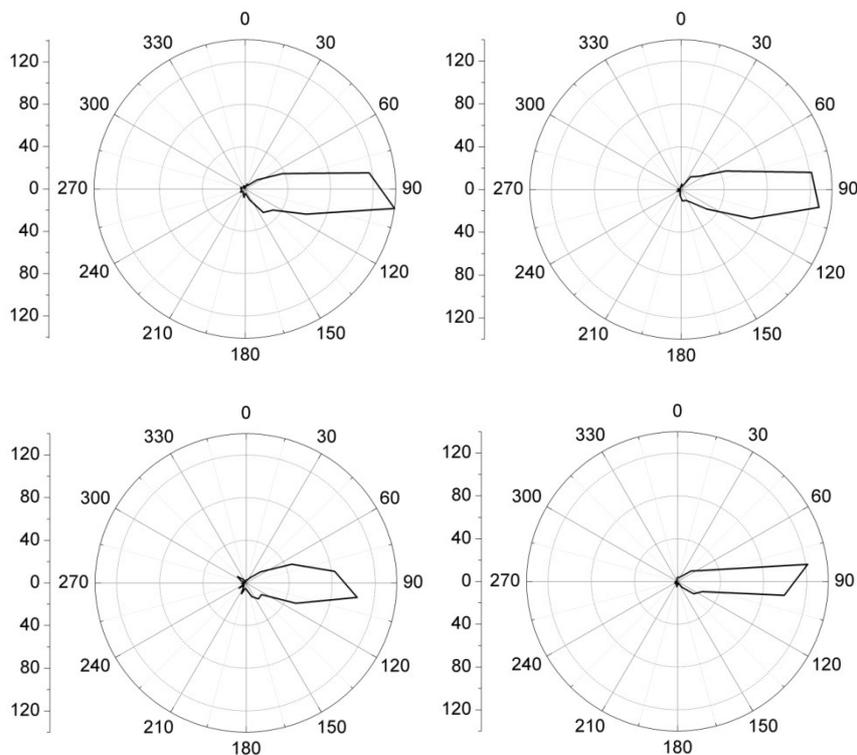
Der Flughafen von Caracas ist ganzjährig von Ostwind beherrscht. Dies trifft sowohl für die unteren 500 Meter (Abb. 4.20) zu als auch für den Bereich 1000 bis 1500 Meter (Abb.4.21).

Der Flughafen liegt nördlich der Stadt Caracas und ist durch eine Gebirgskette von der Stadt getrennt. Bei der vorherrschenden Windrichtung können somit keine Emissionen der Stadt den Flughafen erreichen. Dies schlägt sich in den verglichen mit den Mittelbreiten niedrigen Kohlenmonoxidkonzentrationen unter 200 ppb nieder. Da die Windrichtung das ganze Jahr über konstant Ost beträgt, können die hohen Stickoxidwerte im Frühjahr, Sommer und Herbst bis in eine Höhe von 6 km nicht auf anthropogene Quellen aus der Grenzschicht zurückgeführt werden. Möglicherweise tragen die Blitzentladungen starker Gewitter in diesem Zeitraum dazu bei, da in der Trockenzeit im Winter bei stabiler Schichtung die Werte niedriger sind. Die Ozonprofile zeigen zu allen Jahreszeiten niedrige Werte. Dies ist für die Tropen typisch (vgl. Logan 1999). In den Profilen der relativen Feuchte ist deutlich die Passatinversion in 4 km Höhe zu erkennen, besonders ausgeprägt in den Monaten

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Dezember bis Mai (Abb. 4.19). Zu dieser Zeit ist die subtropische Antizyklone besonders weit nach Süden verlagert. In 1250 Metern Höhe ist die Windrichtung eindeutig Ost (vgl. Abb. 31), ein Hinweis darauf, dass dies die Hauptwindrichtung, hervorgerufen durch die Passatströmung ist, welche auch am Flughafen unbeeinflusst von Reibungseffekten vorherrscht. Weischet schreibt 1996 in seiner Regionalen Klimatologie zur Küste Venezuelas:

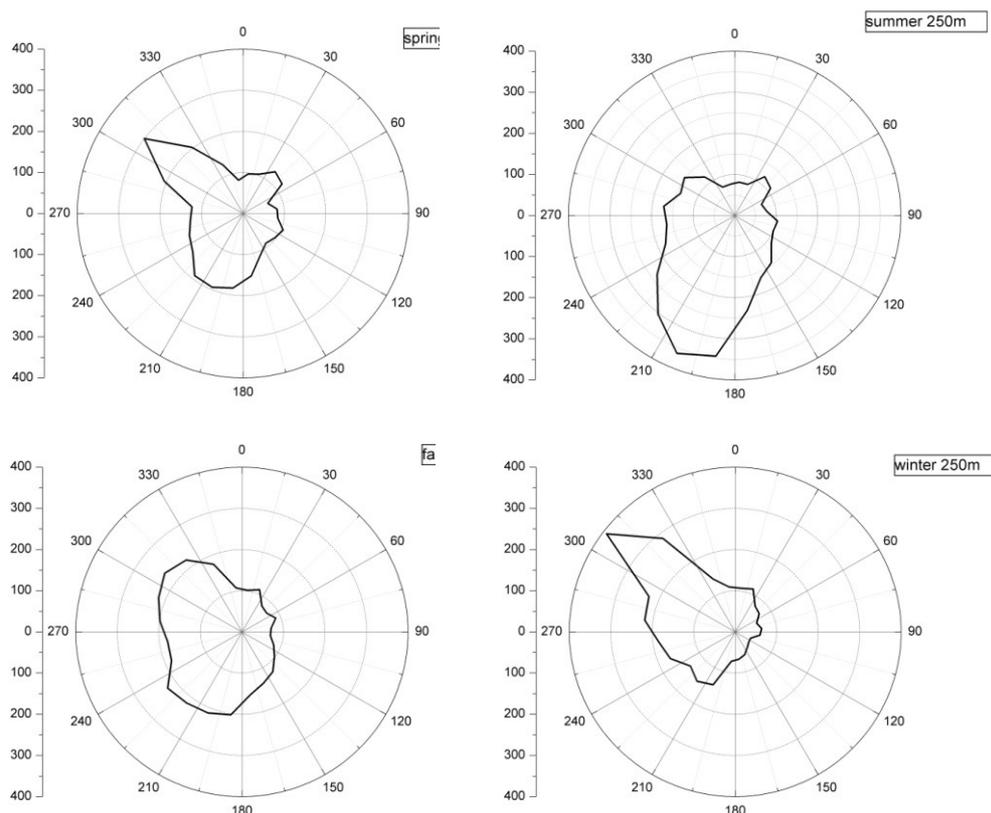
„In der dominierenden östlichen Luftströmung über der südlichen Karibischen See und entlang der venezolanischen Küste entwickeln sich Geschwindigkeits- und Richtungsdivergenzen, die ihrerseits eine Absinktendenz und damit dynamische Stabilisierung der Luftschichtung zur Folge haben. [...] Hinzu kommt noch der stabilisierende Einfluss des relativ kalten Küstenwassers“. (S.373)



**Abbildung 4.21** Windrosen für Caracas, gemittelte Häufigkeiten in 15°-Sektoren zwischen 1000 und 1500 Meter ü. NN, bezeichnet als 1250 Meter

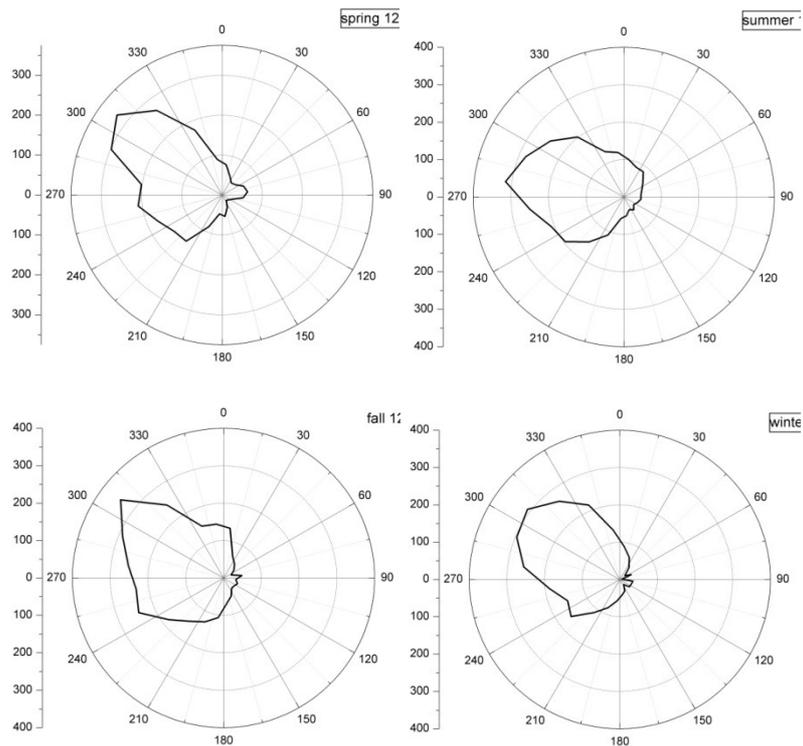
#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Die Stickoxidkonzentrationen sind im Frühjahr und Sommer besonders in der mittleren und oberen Troposphäre deutlich erhöht. Zu dieser Zeit ist die Gewittertätigkeit erhöht, und Labrador et al. (2004) finden in ihren Modellrechnungen zur Verteilung der aus Blitzen gebildeten  $\text{NO}_x$ -Konzentration eine deutliche Erhöhung in der oberen tropischen Troposphäre (Labrador et al. 2004). Am New Yorker John F. Kennedy Flughafen treten in den unteren 500 Metern (Abb. 4.22) zu jeder Jahreszeit unterschiedliche Windrichtungen auf. Im Sommer weht der Wind im Bodenniveau aus südlichen bis südwestlichen Richtungen. Grund ist die Nordwärtsverlagerung der Achse des atlantischen Subtrophenhochs, des Bermuda-hochs, und Beschränkung seines Westrandes auf die atlantiknahen Teile des Südostens der USA (Weischet 1996). Auf der Karte der Druckverteilung der USA im 1000 hPa-Niveau im Juli (Abb. 2.8) ist das gut zu erkennen. Im Frühjahr und Winter dominieren Nordwestwinde. Dies ist auf die Südverlagerung der Polarfront zurückzuführen (vgl. Abb. 2.9).



**Abbildung 4.22** Windrosen für New York, gemittelte Häufigkeiten in 15°-Sektoren zwischen Erdoberfläche und 500 Meter ü. NN, bezeichnet als 250 Meter

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.23** Windrosen für New York, gemittelte Häufigkeiten in 15°-Sektoren zwischen 1000 und 1500 Meter ü. NN, bezeichnet als 1250 Meter

Das Maximum der relativen Feuchte liegt in New York bei 2 km Höhe, im Winter bei 1 Kilometer. In 12 km Höhe steigt das Verhältnis wieder an (Abb. 4.24).

New York ist besonders im Winter durch hohe CO-Konzentrationen um 300 ppb in Bodennähe charakterisiert. Sie sind verbunden mit Nordwestwind. Bei dieser Anströmung ist der Flughafen stark beeinflusst von den Emissionen der Stadt. Im Sommer herrschen Südwestwinde vor, die CO-Konzentrationen sind niedriger. Die Durchmischung mit Atlantikluft ist stärker und der photochemische Verlust durch das im Sommer stärker produzierte OH-Radikal spielt eine größere Rolle.

Bei den Stickoxidkonzentrationen fallen hohe Werte vom Erdboden bis 3000 Meter Höhe im Frühjahr und bis 5000 Meter im Sommer auf. Zu dieser Zeit ist die Gewittertätigkeit im Osten der USA am höchsten (vgl. Kap. 4.3). Dies könnte eine Erklärung für die im Gegensatz zu niedrigen Herbst- und Winterwerten hohen Konzentrationen sein (vgl. Thompson et al. 2007).

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

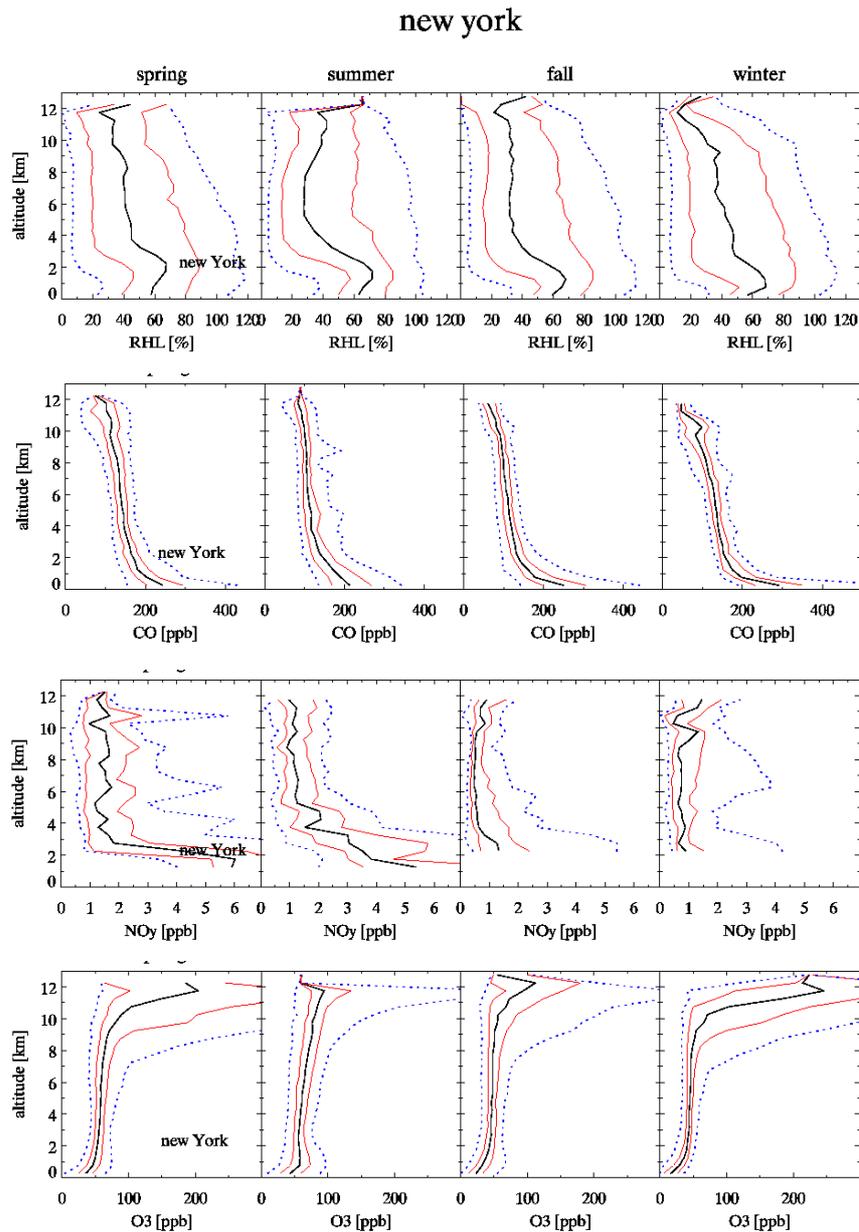
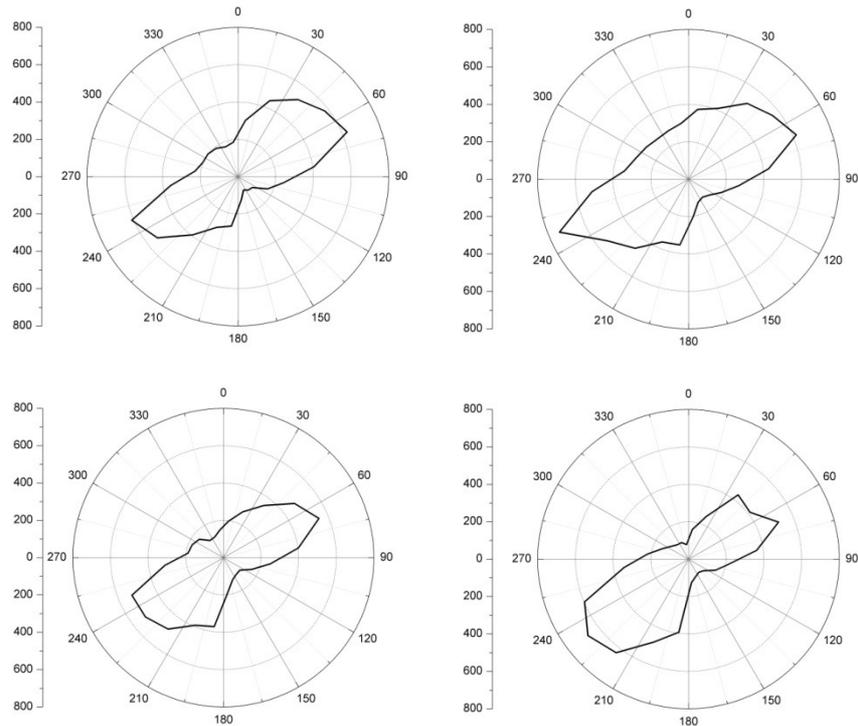


Abbildung 4.24 Vertikalprofile der Relativen Feuchte, Kohlenmonoxid, Stickoxide und Ozon für New York, schwarz: Median, rot 25 bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

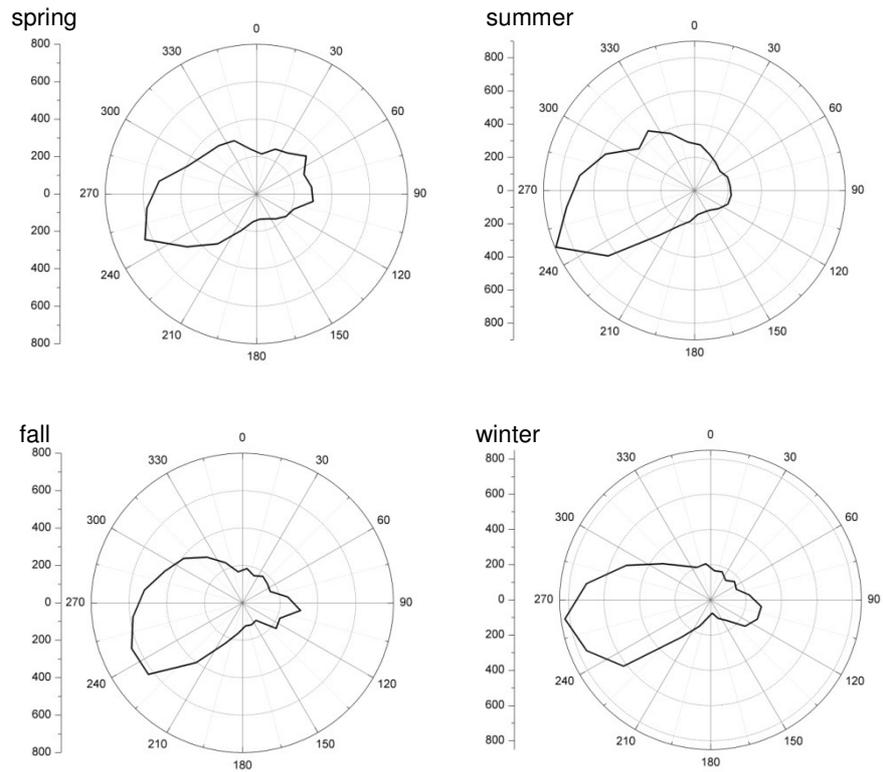


**Abbildung 4.25** Windrosen für Frankfurt, gemittelte Häufigkeiten in 15°-Sektoren zwischen Erdboden und 500 Meter ü. NN, bezeichnet als 250 Meter

Die Windrosen des Frankfurter Flughafens zeigen in den unteren 500 Metern zwei Hauptwindrichtungen in allen Jahreszeiten: Südwest und Nordost. Zwischen 1000 und 1500 Metern ist Südwest die bestimmende Windrichtung (Abb. 4.26). Frankfurt liegt im Einflussbereich der in Mitteleuropa vorherrschenden West- bis Südwestanströmung (Weischet 2000:41).

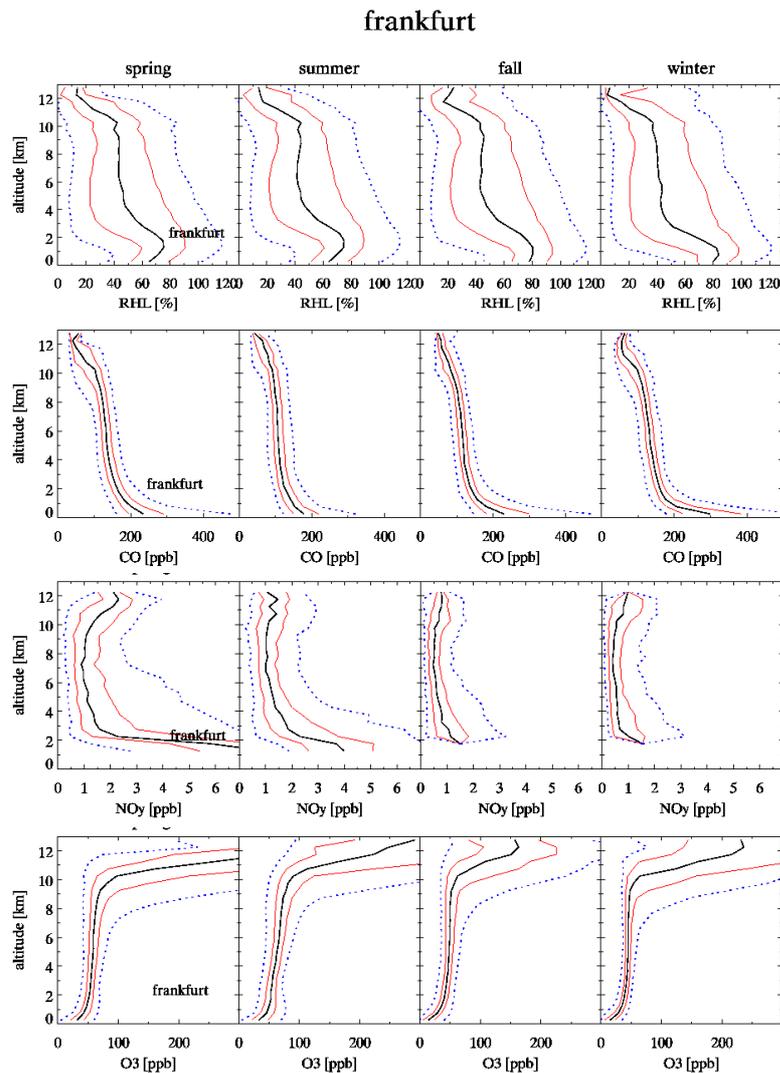
In den unteren 500 Metern wird die Windrichtung stark von der Topographie beeinflusst (Abb. 4.25). Frankfurt liegt im unteren Maintal und wird im Norden vom Taunus und im Südosten von der Wetterau begrenzt. Diese Reliefformation bedingt ein hangabwärtiges Strömen kalter Luftmassen in das Maintal und ein Sammeln und weiter talabwärtiges Strömen des Windes. Somit kommt die Nordost-Komponente der Windrichtung in der Windrose zustande. Die nordöstliche Windrichtung tritt in nahezu dergleichen Häufigkeit auf wie der Südwestwind. Da der Flughafen südwestlich der Stadt liegt, wird der Flughafen ganzjährig durch Emissionen der Stadt belastet. Dies schlägt z.B. in den hohen CO-Konzentrationen (200-300 ppb) in der Grenzschicht nieder, welche in Abb. 4.27 zu erkennen sind.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.26** Windrosen für Frankfurt, gemittelte Häufigkeiten in 15°-Sektoren zwischen 1000 und 1500 Meter ü. NN, bezeichnet als 1250 Meter

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.27** Vertikalprofile der Relativen Feuchte, Kohlenmonoxid, Stickoxide und Ozon für Frankfurt, schwarz: Median, rot: 25 bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

Das Maximum der relativen Feuchte liegt auch in Frankfurt ähnlich wie in New York in einer Höhe von etwa 2 km. Im Jahresverlauf verändert sich das Vertikalprofil kaum. Die CO-Konzentrationen sind in den unteren 1000 Metern am höchsten, im Winter erreichen sie 300 ppb (Abb. 4.27). Auch in Frankfurt liegen die Stickoxidkonzentrationen im Frühjahr und Sommer deutlich höher als im übrigen Jahr. Zu diesen Jahreszeiten zeigen die Profile die typische C-Form mit niedrigen Werten in der mittleren Troposphäre und hohen Werten in der belasteten Grenzschicht und nahe der Tropopause (Schumann und Huntrieser 2007).

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Die Ozonkonzentrationen sind im bodennahen Bereich mit durchschnittlich 20-30 ppb auffallend gering. Dies lässt auf den Einfluss der städtischen Emissionen bei Nordwestwind mit stark belasteten Luftmassen schließen. Weiter fällt bei den Ozonprofilen auf, dass das ganze Jahr hindurch die Werte ab etwa zehn Kilometer deutlich ansteigen. Dieser Anstieg markiert die Tropopause, die somit in Frankfurt tiefer liegt als in New York. Auch die homogeneren Feuchtedaten deuten auf das maritim geprägte Klima der Kontinent-Westseite hin.

Nach mehreren Hinweisen auf die Unterschiede in den breittengleichen Ost- und Westseitenklimaten der Außertropen werden im nächsten Abschnitt die Flughäfen der US-Ostküste genauer untersucht.

Die Windrosen wurden für alle Flughäfen erstellt. Die Tabelle mit den Verteilungen der Windrichtungen über die Jahreszeiten in den unteren 500 Metern für alle 50 Flughäfen (Tab. A1) befindet sich im Anhang.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

##### 4.4.4 WIND- UND SPURENSTOFFROSEN FÜR VERSCHIEDENE HÖHEN

Zur Visualisierung der Wind- und Spurenstoffdaten für zwölf verschiedene Höhenlevel von 500 bis 6000 Meter wurde ein IDL-Programm (Thomas et al. in preparation) verwandt.

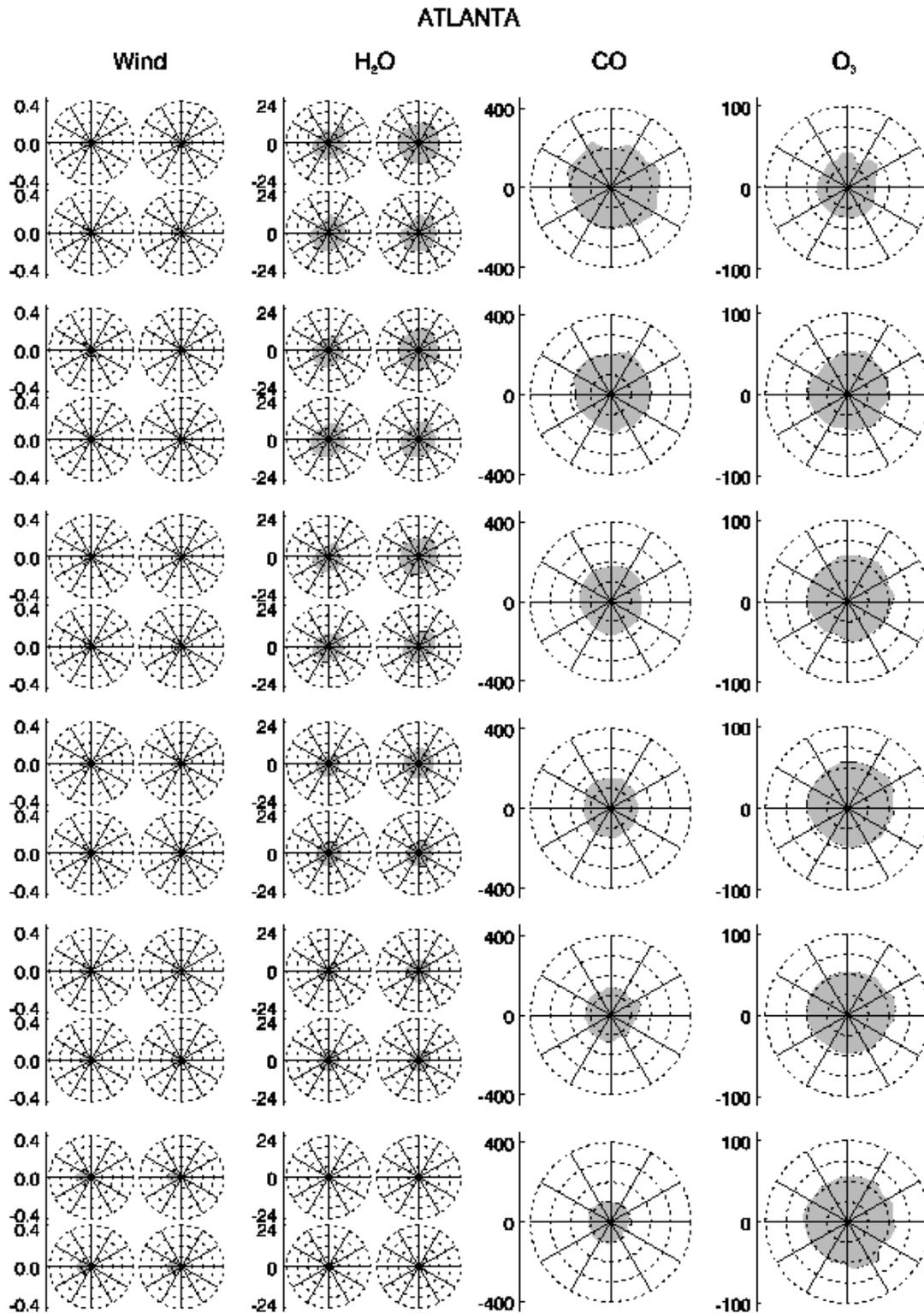
Aus dieser Darstellung lassen sich Informationen über Wind-, Wasserdampf- und Spurenstoffverteilungen sowohl in horizontaler Dimension (gemittelt über 500 Höhenmeter) als auch die Veränderung der Konzentration mit der Höhe gewinnen. Die dargestellten Höhen repräsentieren das 250-Meter-Niveau, gefolgt vom 750-, 1250-, 1750-, 2250- und 4750-Meter-Niveau, von oben nach unten gelesen. Für die Flughäfen Atlanta, Boston, New York und Washington, welche in Kapitel 5 noch unter Verwendung einer Wetterlagenklassifikation analysiert werden, sind die Abbildungen hier dargestellt.

Auffällig in Atlanta (Abb. 4.28) sind die hohen Ozonkonzentrationen bereits in den unteren Luftschichten. Das Feuchtemaximum liegt zwar im Sommer, jedoch unterscheiden sich die Werte wenig von denen der restlichen Jahreszeiten. Atlanta liegt in einer ländlich geprägten Umgebung, so dass die bodennah herangeführten Luftmassen die für die ruralen Gegenden im Osten der USA typischen hohen Ozonkonzentrationen (Logan 1989) aufweisen. Scheel et al. (1997) finden für den Sommer in Mitteleuropa höhere Ozonkonzentrationen bei moderatem Sonnenschein und niedrigere Konzentrationen bei starker Einstrahlung und bezeichnen die Herkunft der mit Ozonvorläufern angereicherten Luftmassen als maßgebend (Scheel et al. 1997). Boston (Abb. 4.29) weist in Bodennähe saisonal wechselnde Windrichtungen auf. Im Frühjahr weht der Wind aus Nordwest und Südwest, im Sommer aus Süd, im Herbst aus Nordwest und Südwest und im Winter überwiegend aus Nordwest. Das Wasserdampfmaximum liegt im Sommer mit einer leichten Südwest-Komponente, was den feuchtwarmen, an der Westflanke der Atlantikzyklone herantransportierten Luftmassen entspricht. Ab etwa 1000 Meter wird die Windrichtung von der vorherrschenden Westströmung dominiert. Der Flughafen in New York John F. Kennedy ist durch außerordentlich hohe CO-Konzentrationen von im Mittel 300 ppb in Bodennähe charakterisiert (Abb. 4.30). Die Ozonkonzentrationen weisen eine leichte Süd-Südwest-Abhängigkeit der Windrichtung auf und sind vergleichsweise niedrig. Die Grenzschicht liegt in 750 bis 1000 Meter. Die saisonalen Windrichtungen

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

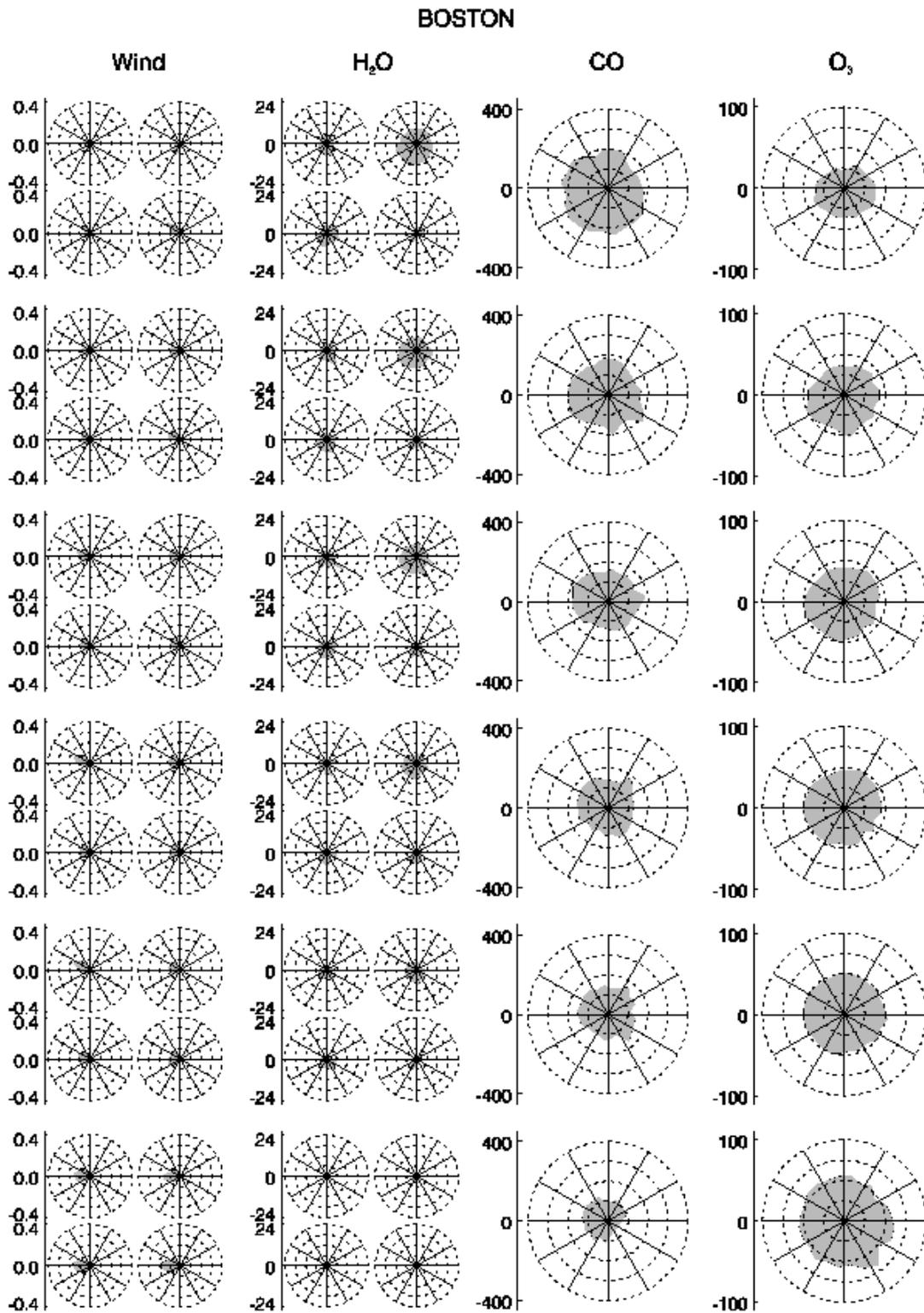
stimmen weitgehend mit denen Bostons überein. Washington weist in den unteren Bereichen Süd-, Nord- und Nordwestkomponenten auf, bevor der Wind ab ca. 1500 Meter in die allgemeine Westanströmung übergeht (Abb. 4.31). Die CO-Konzentrationen sind in allen Höhenbereichen homogen verteilt. In 6000 Metern dominiert eine Südostkomponente. Die Ozonkonzentrationen in den unteren Troposphären-schichten zeigen eine Südwestkomponente und in 6000 Metern eine auffällige Nordostkomponente. Das Maximum des Wasserdampfmischungsverhältnisses liegt eindeutig im Sommer in den unteren Schichten. Oberhalb 1750 Meter ist keine saisonale Variabilität in den Daten zu erkennen. Die Ergebnisse der Untersuchung der Wind- und Spurenstoffrosen für alle Flughäfen im Hinblick auf die geographischen Charakteristika sind stichpunktartig in Tabelle 4.3 aufgeführt. Soweit möglich wurde aus den Winddaten und auch mithilfe der Spurenstoffe, insbesondere der CO-Konzentrationen, die Planetare Grenzschicht bestimmt. Die Bestimmung der Grenzschicht ist für die Modellierung von CO-Konzentrationen von Bedeutung, da sie wie ein Deckel für Abgasfahnen wirkt und somit starke Belastung in den bodennahen Schichten hervorruft (Kiley et al. 2003).

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



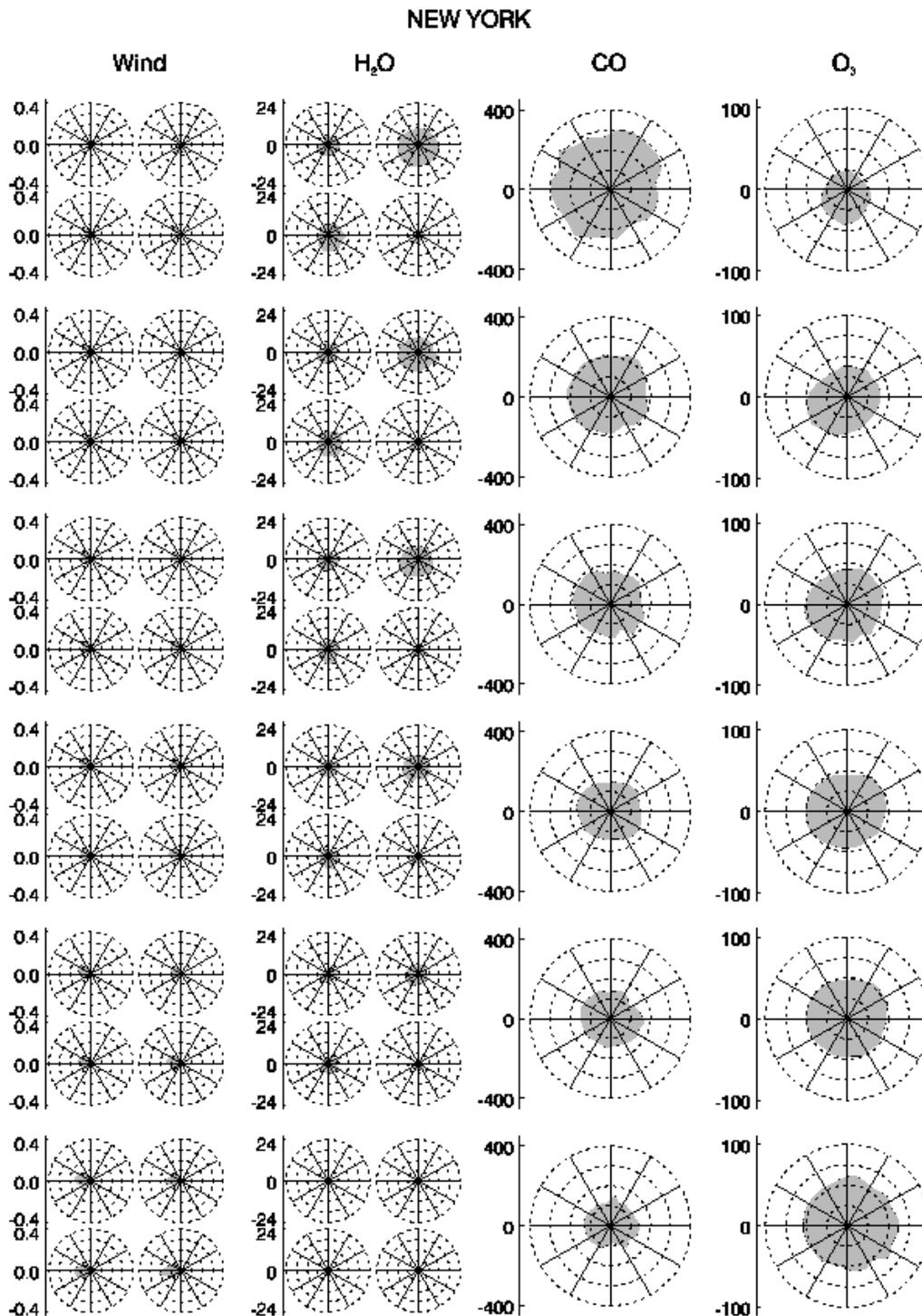
**Abbildung 4.28** Wind- und Spurenstoffkonzentrationen für 250, 750, 1250, 1750, 2250 und 4750 Meter. Wind: relative Häufigkeit, Wasserdampf: g/kg, Kohlenmonoxid und Ozon: ppb, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



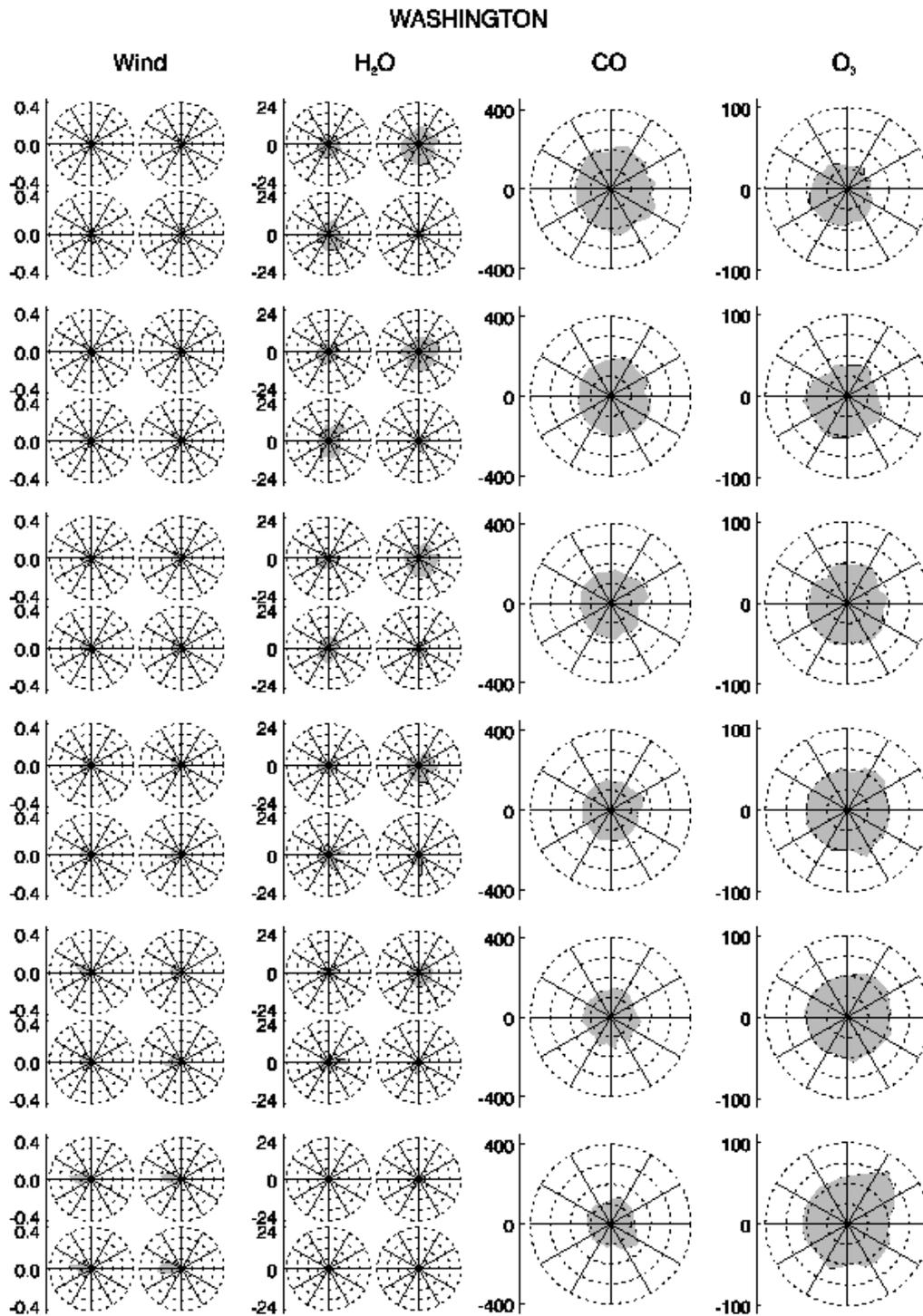
**Abbildung 4.29** Wind- und Spurenstoffprofilen für 250, 750, 1250, 1750, 2250 und 4750 Meter. Boston. Wind: relative Häufigkeit, Wasserdampf: g/kg, Kohlenmonoxid und Ozon: ppb, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.30** Wind- und Spurenstoffkonzentrationen für 250, 750, 1250, 1750, 2250 und 4750 Meter. Wind: relative Häufigkeit, Wasserdampf: g/kg, Kohlenmonoxid und Ozon: ppb, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.31** Wind- und Spurenstoffproben für 250, 750, 1250, 1750, 2250 und 4750 Meter. Wind: relative Häufigkeit, Wasserdampf: g/kg, Kohlenmonoxid und Ozon: ppb, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

**Tabelle 4.3** Wind- und Spurenstofffrosen in der freien Troposphäre. BL = Boundary Layer

Flughafen	Auswertung Rosen bis 6000m
Abu Dhabi	ganzjährig W,NW-Wind, H2O Sommer, Herbst hoch, CO nicht >300ppb, O3-max W, oben NE
Atlanta	Wind unten W,E,SW,NW,BL~1000m, CO,O3 homogen
Bangkok	Passat/Monsun BL 1500, CO N-NE
Beijing	BL Sommer 1750m, CO+1ppm,SW/E,O3+50ppb
Bogota	BL?
Boston	BL 1000m, Sommer hohes H2O, CO,O3 homogen
Brazzaville	BL 1500-1750m,O3 unten inhomogen,hoch, oben homogen-50ppb
Brussels	BL 750m,Sommer H2O hoch,CO,O3 homogen
Cairo	BL 1500m,H2O Sommer,Herbst hoch,CO,O3hoch,S,SW
Capetown	BL750m,H2O hoch Winter,O3 homogen,SE
Caracas	BL 1750m,Wind immer konstant E
Chennai	BL 2250 nach H2O,O3 inhomogen,N,S oben homogen
Chicago	O3,H2O homogen verteilt,H2O+Sommer,BL1000m(750)
Cincinnati	BL 800/1500 Frühjahr H2O stark variabel,CO nur W,O3homogen verteilt
Cologne	BL 500-1000m, sehr homogen
Dallas	BL 1000m,H2O+Sommer,O3 unten hoch wie oben
Delhi	BL500m,H2O+Sommer,Herbst,CO1ppm,O3Norden
Detroit	BL1000m,H2Ovariabel Sommer,COvariabel,S,O3 S,E
Dubai	BL500m nach wind, H2O,Sommer,Herbst
Frankfurt	BL500-1000,wenigH2O,Sommer,CO,O3 homogen
Hanoi	BL1500m,hoch H2Ovariabel,O3 homogen,W,SW
Ho Chi Minh City	CO250ppb,>1ppm,O3inhomogen,N,S
Hongkong	BL2250 nach H2O,O3 auch unten hoch,Cobis 750ppb NE
Houston	BL1250-1500m,CO unten SW,oben homogen,O3 unten so hoch wie oben
Johannesburg	BL2500m,CO SW, O3 unauffällig
Kigali	BL2500m, O3inhomogen,unten so hoch wie oben
Kuwait	BL 2500-4000m,CO500ppb,O3 ab 750m hoch
Lagos	BL1000m,unten CO>1ppm,O3 ab 750m hoch N
Los Angeles	BL500-750,O3 hoch ab 750m,CO hoch E,NE
Male	Passatschicht 2000m,BL nach O3 750m, gering,tropisch
Mexico	O3 unten hoch
Miami	H2O ab 1250m gering,nach Wind und O3,CO 750m geringer
Montreal	gut durchmischt,CO,O3 sehr homogen unten/oben
Mumbai	BL3000m,unten hohes O3,N,hohes CO E,SE
Munich	BL1000m,H2O,CO,O3 sehr homogen
Nairobi	BL2000m?H2O Sommer,Herbst hoch, O3 niedrig
New York	BL750-1000m, CO,O3 homogen
Osaka	BL1750m, O3 homogen,CO unten homogen
Paris	BL750m,H2Oniedrig,CO,O3 extrem homogen
Quito	BL3500m, sehr exakt!
Rio de Janeiro	BL2000m?hohes CO N,O3 niedrig
San Francisco	BL500/1500m,CO unten hoch,inhomogen,E,SE, O3 homogen
Sao Paulo	BL1000-1500m,O3 homogen
Seoul	BL>2500m,CO W, O3 hoch S
Shanghai	BL1000/2000m,CO+400ppb,NW,O3 hoch
Teheran	BL3500,extrem trocken,extremes CO E,NE,S, O3 oben sehr hoch
Tel Aviv	BL2500,Passat,H2O S,CO,O3 homogen
Tokyo	BL1000m,H2O Sommer und Herbst,hohes CO, O3 homogen
Toronto	BL500m,H2O niedrig, CO,O3 homogen
Vancouver	BL1500m,H2O sehr niedrig,CO,O3 homogen
Vienna	BL1500m,H2O sehr homogen/niedrig,CO,O3 homogen
Washington	BL 1500m,H2O inhomogen,E,SE,CO,O3 homogen
Windhoek	BL 3000m,H2O S,O3 kaum Änderung von unten nach oben

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Die Ergebnisse müssen unter Berücksichtigung der Tatsache betrachtet werden, dass viele Flughäfen über den Tag verteilt mehrere An- und Abflugintervalle aufweisen. Daher wirkt sich der Tagesgang der Grenzschicht auf die Ergebnisse aus, da in die Untersuchung alle am Flughafen gesammelten Daten einfließen. Die Anzahl der Intervalle gewonnen aus den Start- und Landezeiten an den Flughäfen sind Tab. 4.4 zu entnehmen.

Neben dem Tagesgang, der durch eine variable Höhe der planetaren Grenzschicht infolge verstärkter Erwärmung und Ausdehnung am Tag bestimmt wird, besteht auch eine photochemische Abhängigkeit von der Tageszeit. Für das photochemische Produkt Ozon liegt diese in der zeitlichen Verteilung von Emissionen. Tao et al. (2004) finden in 3D-Modellrechnungen bei einer Auflösung auf 90 km für die kontinentalen USA in den tagsüber gemessenen Konzentrationen eine geringere Empfindlichkeit gegenüber zeitlich schwankenden Emissionen als in den nächtlichen Konzentrationen, welche sich weniger den einheitlichen denn den zeitlich variablen Konzentrationen zuordnen lassen (Tao et al. 2004).

Die ähnlichen Merkmale der Flughäfen Boston und New York sowie Washington und Atlanta spiegeln sich auch in den Abweichungen der Flughäfen von einem regionalen Mittelwert wider. Dieser wurde aus folgenden Daten ermittelt:

Der gewichtete Mittelwert ( $M$ ) von Boston 941, New York 3189, Washington 523 und Atlanta 1210 Profilen wurde durch den Quotient der Anzahl der Profile an einem Flughafen ( $n_x$ ) durch die Gesamtanzahl der Profile ( $N$ ) multipliziert mit dem Mittelwert der Spezies an dem jeweiligen Flughafen ( $m_x$ ) bestimmt.

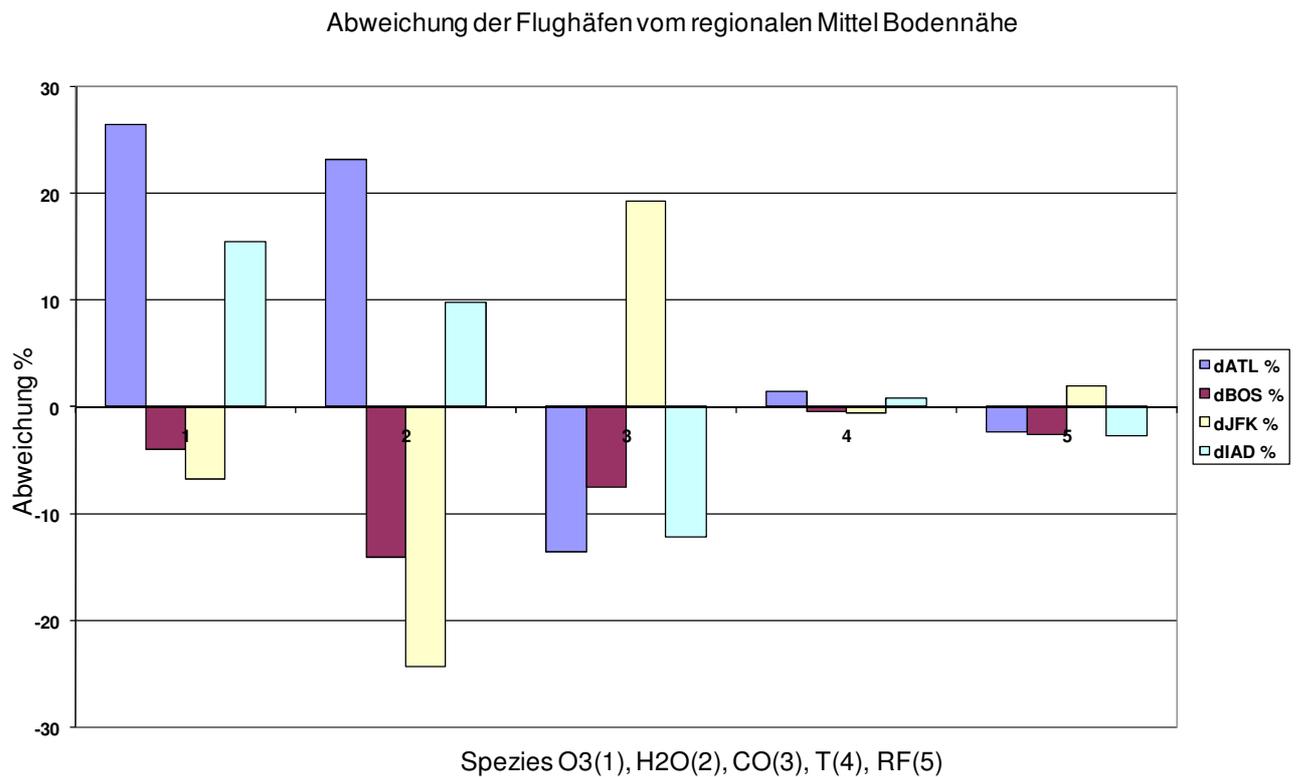
$$M = \sum_{i=1}^x \frac{n_x}{N} m_x \quad [39]$$

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

**Tabelle 4.4** Übersicht über die Flughäfen mit Anzahl der Start- und Landepprofile sowie Ankunfts- bzw. Abflugzeiten bzw. intervalle in UTC

airport	climate zone	longitude	latitude	height	arr	dep	profiles	departure times UTC	arrival times UTC	time zone
Abu Dhabi	BWh	54.6511	24.4328	27	156	152	308	18-01, 4-6	17-22, 1-3	UTC + 3
Cairo	BWh	31.4056	30.1219	116	168	171	339	13-16,17-20,24-7	12-14,15-18,21-03	UTC + 2
Dubai	BWh	55.3642	25.2547	10	279	284	563	17-03,09,13	17-03,9-10,12-13	UTC + 3
Kuwait	BWh	47.98	19.2267	63	42	42	84	17-19,22-24	16-18(19),20-23	UTC + 3
Windhoek	BWh	17.2815	-22.2848	1719	70	70	140	07-09,14-15,17-21	06-08,09-11,15-19	UTC + 1
Atlanta	Cfa	-84.4269	33.6403	313	605	605	1210	20-04	17-01(17-20,23-01)	UTC - 5
Boston	Cfa	-71.005	42.3642	6	475	466	941	20-04	17-20	UTC - 5
Cincinnati	Cfa	-84.397	39.028	271	156	155	311	22-02	18-21(24)	UTC - 5
Dallas	Cfa	-97.0375	32.8964	184	532	533	1065	19-03	17-21,22-01	UTC - 6
Houston	Cfa	-95.3397	29.9803	30	428	425	853	21-24(01),6-7	(4-5), 18-23	UTC - 6
New York	Cfa	-73.7789	40.6397	4	1609	1580	3189	20-06	15-04	UTC - 5
Osaka	Cfa	135.2439	34.4272	8	658	656	1314	0-5	21-02	UTC + 9
Sao Paulo	Cfa	-46.4683	-23.4317	750	495	486	981	10-13,16-24,19-22	7-12(13),17-23	UTC - 3
Seoul	Cfa	126.2702	37.2809	7	179	174	353	01-07	22-05	UTC + 9
Shanghai	Cfa	121.7925	31.1428	3	164	165	329	02-05,14-15	22-03(04),06-09	UTC + 8
Tokyo	Cfa	140.3864	35.7647	43	542	530	1072	1-6	23-04	UTC + 9
Washington	Cfa	-77.4556	38.9444	95	263	260	523	20-01,(22-24)	19-22(23),01-02	UTC - 5
Bangkok	Aw	100.6067	13.9125	3	327	333	660	4-10, 14-18	02-04,05-09,13-15	UTC + 7
Bogota	Aw	-74.1469	4.7014	2548	112	108	220	10-12,16-18,23-02	09-12,14-18,21-24	UTC - 5
Brazzaville	Aw	15.1511	-4.1506	319	59	57	116	7-12,16,19-23	05-11,16-22	UTC + 1
Caracas	Aw	-66.9906	10.6031	72	314	311	625	18-04	17-23,(2-3,7-8)	UTC - 4
Chennai	Aw	80.105	12.594	16	123	123	246	19-22	16-20	UTC + 5 1/2
Ho Chi Minh	Aw	106.6617	10.82	10	69	70	139	12-14	8-12	UTC + 7
Kigali	Aw*	30.0759	-1.5759	1491	32	32	64	18-20	16-19	UTC + 2
Miami	Aw	-80.291	25.793	2	100	87	187	20-04	17-02	UTC - 5
Mumbai	Aw	72.52	19.0527	8	70	68	138	8,19-23	16-20	UTC + 5 1/2
Rio de Janeiro	Af	-43.2436	-22.8089	9	274	276	550	1-2,10-12,16-21,24	7-13(6-16),19-24	UTC - 3
Brussels	Cfb	4.2909	50.5428	56	1255	1293	2548	8-12,13-15,17-20	05-09,10-13,14-18	UTC + 1
Cologne	Cfb	7.0857	50.5202	72	111	109	220	11-13	4-6	UTC + 1
Frankfurt	Cfb	8.5431	50.0264	111	4114	4210	8324	08-10,11-14,15-18,20-23	03-14,16-19	UTC + 1
Munich	Cfb	11.4715	48.2117	453	643	657	1300	9-12,13-16,17-22	03-17(3-9,10-13,14-17)	UTC + 1
Paris	Cfb	2.3255	49.0035	118	1978	2143	4121	8-14,21-23	03-17	UTC + 1
Vienna	Cfb	16.3415	48.0639	183	1810	1864	3674	09-14,18-19,21-23	03-19(03-11,13-18)	UTC + 1
Delhi	Cwa	77.1031	28.5664	237	305	301	606	19-22,03-06	16-20,(0-3)	UTC + 5 1/2
Hanoi	Cwa	105.482	21.1318	12	58	56	114	11-13(14)	8-12	UTC + 7
Hongkong	Cwa	113.9144	22.3089	9	28	28	56	15-17	6-10,(19-21)	UTC + 8
Johannesburg	Cwb	28.1432	-26.0801	1694	275	292	567	9-11,17-20	5-10,15-18	UTC + 2
Mexico	Cwb	-99.04	19.25	2230	29	28	57	01-07	23-04	UTC - 6
Nairobi	Cwb	36.5552	-1.1857	1798	58	58	116	20-23(01)	18-22	UTC + 3
Quito	Cwb	-78.4667	-0.1333	2813	46	42	88	12-17,(13-15)	11-14(15-16)	UTC - 5
Lagos	Am	3.3211	6.5772	41	179	178	357	15-19,21-24	14-18,19-24	UTC + 1
Male	Am	73.3145	4.1129	2	31	31	62	05-10	2-8	UTC + 5
Capetown	Csb	18.36	-33.58	50	24	25	49	14-16	10-13(14)	UTC + 2
Los Angeles	Csb	-118.4081	33.9425	38	32	32	64	22-02, 6-7	20-24	UTC - 8
San Francisco	Csb	-122.3747	37.6189	4	142	136	278	0-6	20-03	UTC - 8
Vancouver	Csb	-123.1819	49.195	4	82	82	164	23-02,(04-05)	21-01	UTC - 8
Teheran	Csa	51.3133	35.6892	1208	141	142	283	22-02	17-24(17-19,20-23)	UTC + 3 1/2
Tel Aviv	Csa	34.8767	32.0094	41	171	170	341	2-5,13-16	0-3,11-14	UTC + 2
Chicago	Dfa	-87.9044	41.9794	204	614	612	1226	21-05	18-22,23-02	UTC - 6
Detroit	Dfa/Dfb	-83.3533	42.2122	197	139	138	277	22-01	19-22	UTC - 5
Detroit	Dfa/Dfb	-83.3533	42.2122	197	139	138	277	22-01	19-22	UTC - 5
Montreal	Dfb	-73.7414	45.4681	36	70	65	135	21-04	18-03	UTC - 5
Toronto	Dfb	-79.6306	43.6772	173	188	184	372	20-04	18-03	UTC - 5
Beijing	Dwa	116.5844	40.0498	35	365	373	738	23-01,03-09,15-16	22-07	UTC + 8

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



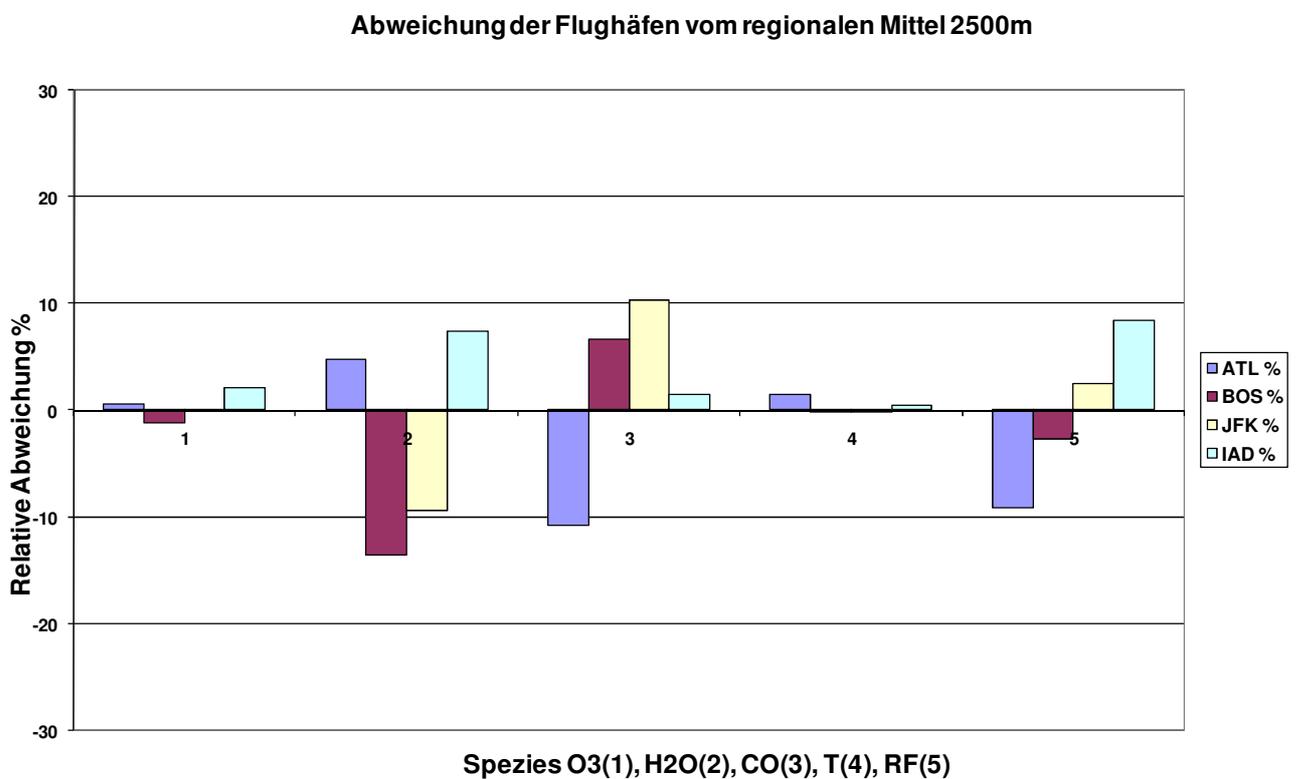
**Abbildung 4.32 a** prozentuale Abweichung vom regionalen Mittelwert der Spezies Ozon, Wasserdampf, Kohlenmonoxid, Temperatur in K und relativer Feuchte für die Flughäfen Atlanta (blau), Boston (violett), New York (gelb) und Washington (hellblau): Bodenniveau

Es fällt in Abb. 4.32a auf, dass Boston und New York trotz großer räumlicher Nähe einen bedeutenden Unterschied in den Kohlenmonoxid-Verteilungen in Bodennähe aufweisen. Dies bestätigt die Darstellung in den Spurenstoffrosen. Der Großraum New York ist stärker belastet. Bei ganzjähriger Westkomponente in der Anströmrichtung ist die Luft, die den Flughafen erreicht, derart belastet, dass nur geringe Ozonkonzentrationen auftreten, die negativ vom Mittelwert abweichen (vgl. Kap. 2.2). Deutlich positive Abweichungen vom Ozonmittelwert unterhalb der Grenzschicht zeigen Atlanta und auch Washington bei geringeren CO-Konzentrationsabweichungen. Diese Ausprägung folgt den Spurenstoffrosen in Abbildung 4.28 bzw. 4.31. Die ebenfalls positiven Abweichungen des Wasserdampf-Mischungsverhältnisses in Atlanta und Washington erklären sich unter anderem auch

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

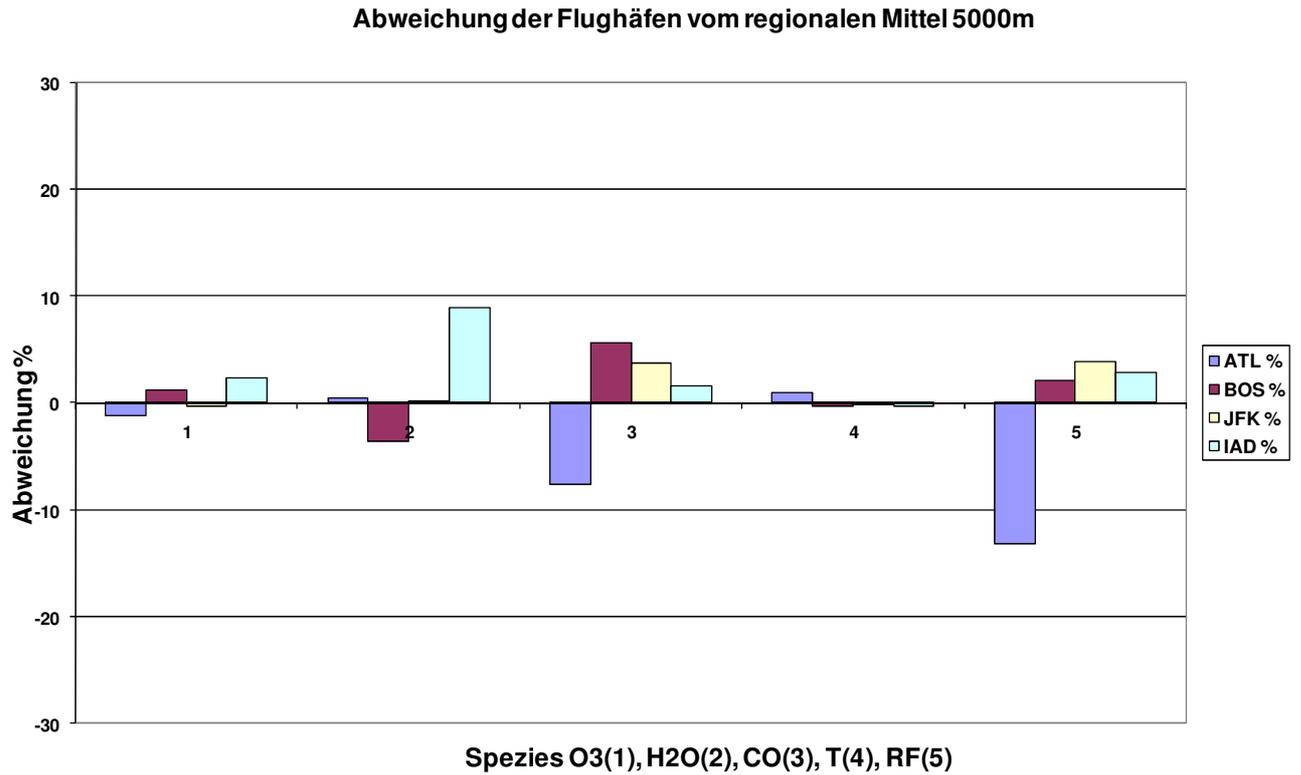
durch die ganzjährig höheren Werte im Vergleich zu den Sommermaxima in New York und Boston (vgl. Abb. 4.28 - 4.31).

Mit zunehmender Höhe werden die Abweichungen geringer (Abb. 4.32b und 4.32c). Für die Ozonkonzentrationen verschwinden sie in der freien Troposphäre nahezu vollständig. Auffällig sind die in allen drei Höhenschichten sehr homogenen Temperaturwerte. Dies deutet ebenfalls auf den überwiegend zirkulationsbedingten Einfluss auf die Spurengasverteilung hin. Regionale bzw. lokale photochemische Ozonproduktion würde sich u.a. in höheren bzw. positiv abweichenden Temperaturwerten widerspiegeln.



**Abbildung 4.32b** prozentuale Abweichung vom regionalen Mittelwert der Spezies Ozon, Wasserdampf, Kohlenmonoxid, Temperatur in K und relativer Feuchte für die Flughäfen Atlanta (blau), Boston (violett), New York (gelb) und Washington (hellblau): 2500 Meter

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre



**Abbildung 4.32c**      prozentuale Abweichung vom regionalen Mittelwert der Spezies Ozon, Wasserdampf, Kohlenmonoxid, Temperatur in K und relativer Feuchte für die Flughäfen Atlanta (blau), Boston (violett), New York (gelb) und Washington (hellblau): 5000 Meter

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

##### 4.4.5 *JAHRESGÄNGE DER O<sub>3</sub>-, H<sub>2</sub>O-, CO- UND NO<sub>y</sub>- KONZENTRATIONEN FÜR 12 VERSCHIEDENE HÖHENNIVEAUS AN AUSGEWÄHLTEN FLUGHÄFEN*

Aus dem Datensatz wurden Monatsmittelwerte über den gesamten Messzeitraum gebildet. Zur Aussortierung wurden jeweils 500 Meter-Intervalle - beginnend vom Erdboden bis 6000 Meter Höhe (L1 - L12) - festgelegt und alle Messwerte der jeweiligen Substanz in diesem Höhenbereich gemittelt. Dabei wurde wieder ein 2° Breite mal 2° Länge Feld um den entsprechenden Flughafen berücksichtigt, um eine ausreichend hohe Datenabdeckung zu gewährleisten. In diesem Ausschnitt sind bei den verschiedenen nach Start- bzw. Landewinkeln repräsentative Daten bis in die obere Troposphäre erfasst. Weiterhin greifen bei dieser Wahl des Ausschnitts dicht beieinanderliegende Flughäfen nicht ineinander über. Somit lassen sich die Jahresgänge von Ozon, Wasserdampf, Kohlenmonoxid und in größeren Höhen auch ein Jahresgang der Stickoxide darstellen (in Bodennähe keine Messungen, s. Kap. 3). Da die Konzentrationen hochvariabel sind, insbesondere die außergewöhnlich hohen CO-Konzentrationen an der chinesischen Ostküste und die hohen Wasserdampfmischungsverhältnisse um die Tropenflughäfen, ist die Skala der Abbildungen nicht einheitlich.

Untersucht wurden Flughäfen an der Ostküste der USA: Boston, New York, Washington und Atlanta, in Ostasien Tokyo, Osaka, Peking und Shanghai, die europäischen Flughäfen Frankfurt und Brüssel. Die amerikanischen und asiatischen Flughäfen sollen als Repräsentanten der Ostseitenklimate mit denen der Westseite des europäischen Kontinents verglichen werden. Anhand der Flughäfen Caracas, Sao Paolo und Hongkong lassen sich Besonderheiten der wechselfeuchten Tropen bzw. Subtropen herausstellen.

Bei Betrachtung der Ozon-Jahresgänge (Abb. 4.33a - k) zeichnet sich bei allen Flughäfen ein deutliches Maximum in den Sommermonaten ab. In den unteren Schichten bis etwa 5000 Meter Höhe liegen bei den untersuchten Flughäfen mit Ausnahme von New York zwei Maxima vor, die erste und deutlicher ausgeprägte Erhöhung im Frühsommer und die zweite im Spätsommer. In der freien Troposphäre liegt das Maximum im Sommer. Der Anstieg der Ozonkonzentration zum Maximum hin verläuft flach, der Abfall in den Herbstmonaten hingegen steil. Dies ist besonders auffällig an den Flughäfen Ostasiens und der US-amerikanischen Ostküste.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

In New York beträgt das Maximum in den unteren Schichten 45 ppb im Juli und August, das Maximum in den höheren Schichten liegt im Mai und Juni bei 65 ppb. Dies steht in guter Übereinstimmung mit Logan (1999). Boston erreicht im Juli in 6000 Metern Höhe 70 ppb, in Bodennähe liegen die Werte zwischen April und Juli über 40 ppb, sinken jedoch im Mai unter 40 ppb.

In Washington liegen die Höchstwerte in den unteren Schichten zwischen April und Juli um 50 ppb mit einem Minimum im Juni. In der obersten Schicht wird im Juni das Maximum mit 72 ppb erreicht. Atlanta weist ein erstes Maximum mit 65 ppb im April in 6000 Metern Höhe auf. Diese Konzentration wird auch im Juli und August erreicht. In der bodennahen Schicht wird im langjährigen Durchschnitt im August ein Mittelwert von 60 ppb erreicht, der höchste Wert der US-amerikanischen Flughäfen, die hier untersucht wurden. Tie et al. (2006) charakterisieren die Luftmassen in Ostchina und im Osten der USA aus Satellitendaten in Kombination mit Modellrechnungen. Dabei finden sie eine niedrigere Konzentration von NMHCs in Ostasien als im Osten der USA und als Konsequenz daraus eine niedrigere Ozonproduktion und -konzentration (40 - 50 ppb) in China als in den USA mit 60 - 70 ppb. Weiter zeigt ihre Analyse, dass in China der größte Anteil der Ozonproduktion (54%) auf die Oxidation von Kohlenmonoxid zurückzuführen ist. In Peking treten mit bodennah 2.8 ppm im Dezember auch die höchsten Kohlenmonoxidkonzentrationen der ausgewerteten Daten auf (vgl. Abb. 4.35g). Im Osten der USA hingegen beruht die Ozonproduktion zu 68% auf der Oxidation reaktiver Kohlenwasserstoffe. Ein Drittel der gesamten photochemischen Ozonproduktion geht in dieser Region auf die Emission biogener Kohlenwasserstoffe zurück. Tie et al. (2006) weisen darauf hin, dass weitere Messungen reaktiver Kohlenwasserstoffe in China unablässig sind. Logan (1999) findet in der freien Troposphäre in den subtropischen Regionen über dem Pazifik ein Sommerminimum und ein Maximum über dem Atlantik. Dies trifft exakt für die Jahresgänge in der mittleren Troposphäre in Tokyo, Osaka, Shanghai und Peking an der Westpazifik-Küste einerseits sowie Atlanta, Washington, New York und Boston, an der Westatlantik-Küste andererseits zu. Obwohl die Flughäfen alle in der gleichen Klimazone Cfa liegen, bestehen diese regionalspezifischen Unterschiede. Logan (1999) führt dies unterschiedliche Zirkulationsmuster zurück. Die Ausführungen in Kap.4.4.3 zeigen, dass die Windrichtungen in den Jahreszeiten schwanken bzw.

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

verschiedene Windrichtungen innerhalb einer Jahreszeit auftreten. Daher erfolgt in Kap. 5 eine weitere Untersuchung zur synoptischen Situation an den Flughäfen im Osten der USA, welche Jahreszeit und Anströmrichtung mit einbezieht.

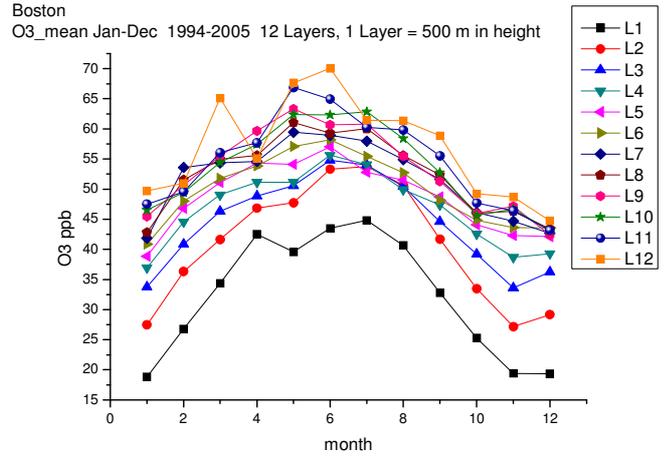
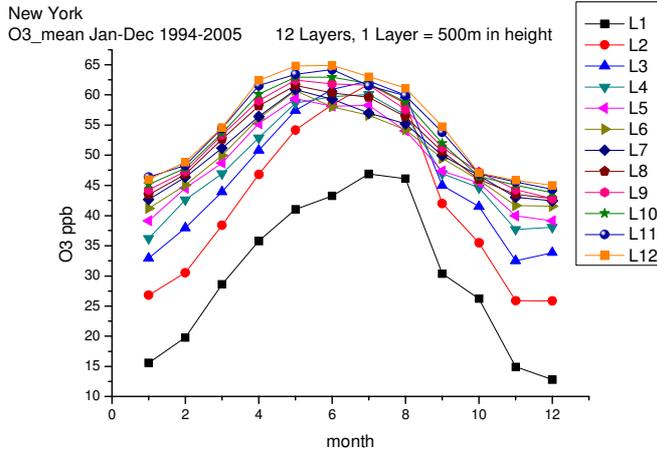
In Frankfurt und Brüssel ist der Verlauf flacher ausgeprägt. In Brüssel liegt das Ozonmaximum der unteren Schichten mit 42 ppb im Frühsommer, in Frankfurt mit 37 ppb im August. Beide Flughäfen zeigen ein Maximum in der obersten Schicht um 67 ppb, in Brüssel im Juni und in Frankfurt im Juli.

Ancellet und Beekmann (1997) finden im Rahmen des TOR-Projektes ein hohes Frühjahr/Sommer Maximum und einen meridionalen Gradienten der Ozonkonzentrationen mit höheren Werten an den nördlicheren Stationen verglichen mit den südlicheren. Diese Unterschiede werden auffälliger mit zunehmender Höhe. Die Ozonkonzentrationen sind auch an den östlicher gelegenen Stationen höher als an den westlichen (Ancellet und Beekmann 1997).

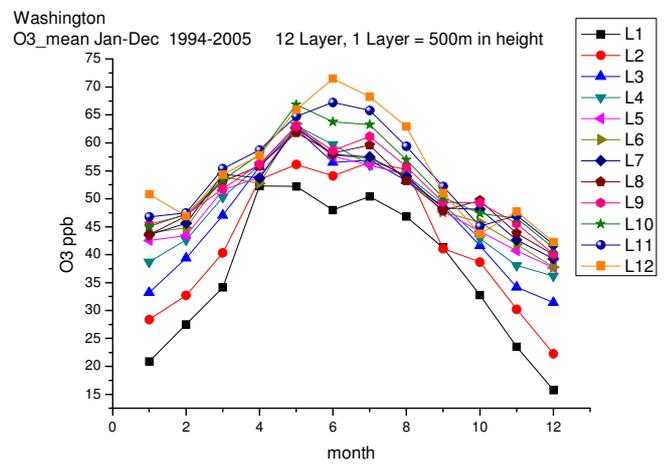
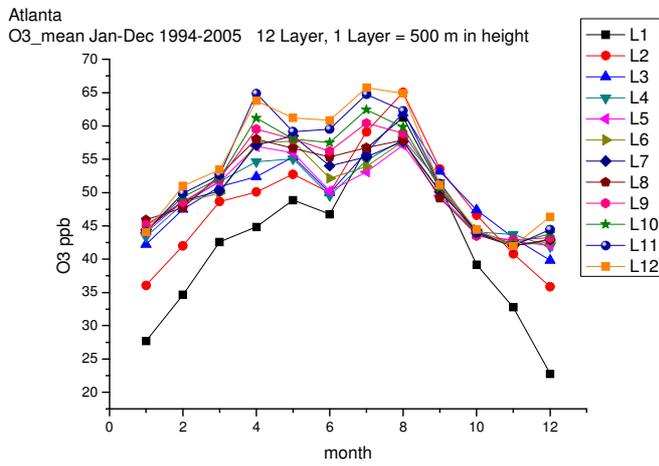
Die hohen Konzentrationen in niedrigen Höhen im Spätsommer, wie in Atlanta, sind durch photochemische Ozonproduktion zu erklären (Ancellet und Beekmann 1997). Creilson et al. (2003) finden bei der Auswertung von Satellitendaten Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS), einem nahezu globalen Datensatz von 1979-2000 mit einem Gitter von 1° Breite und 1.25° Länge von 50°N bis 50°S, höhere Werte im Westen des Atlantiks – bzw. im Osten des nordamerikanischen Kontinents früher im Jahr und steigende Werte im Osten des Atlantiks, wenn das Jahr fortschreitet. Die Ozonsäulen aus den Satellitenmessungen wurden in Regionen zusammen gefasst, von denen zwei Regionen jeweils mit langjährigen Ozonsondierungen validiert werden konnten: Wallops Island, Virginia, für die Region an der Ostküste der USA und Hohenpeissenberg für die Region Südwestfrankreich (Creilson et al. 2003).

## 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

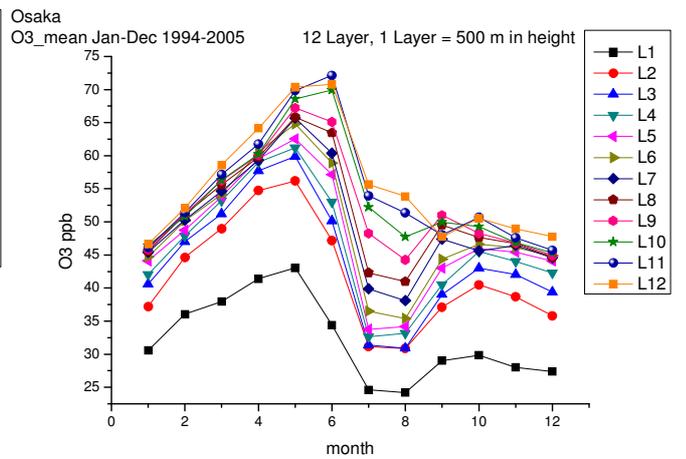
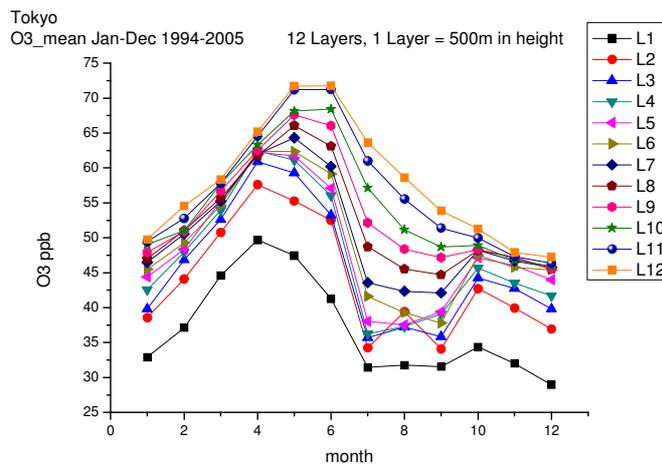
a)



c)

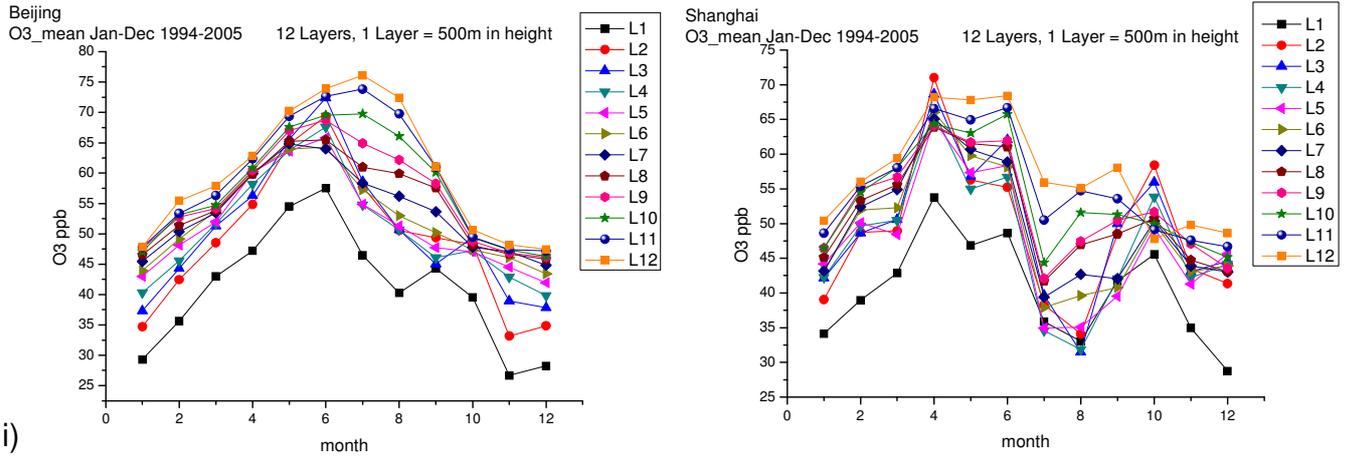


e)

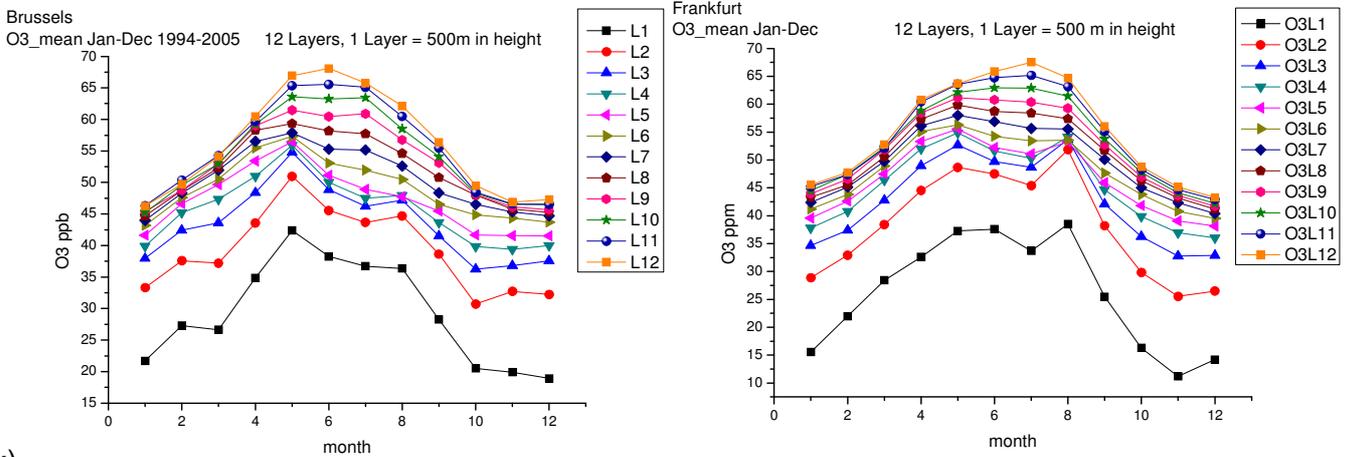


#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

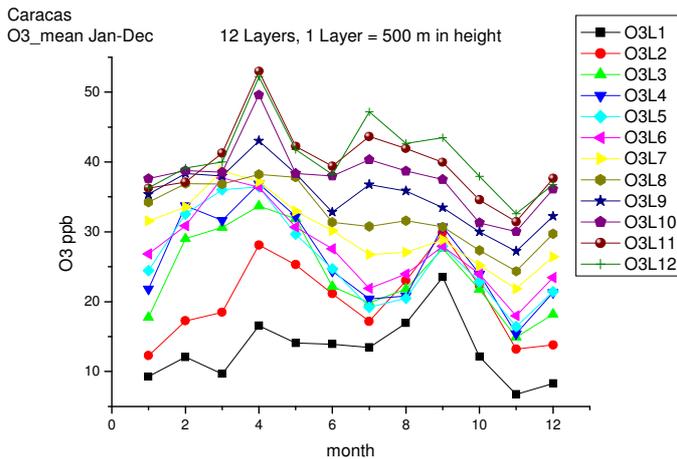
g)



i)



k)



**Abbildung 4.33a – k:** Jahresgänge der Ozonkonzentration in ppb von 500 Meter bis 6000 Meter Höhe, gezählt als L1 bis L12. a) New York, b) Boston, c) Washington, d) Atlanta, e) Tokyo, f) Osaka, g) Peking, h) Shanghai, i) Brüssel, j) Frankfurt, k) Caracas

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

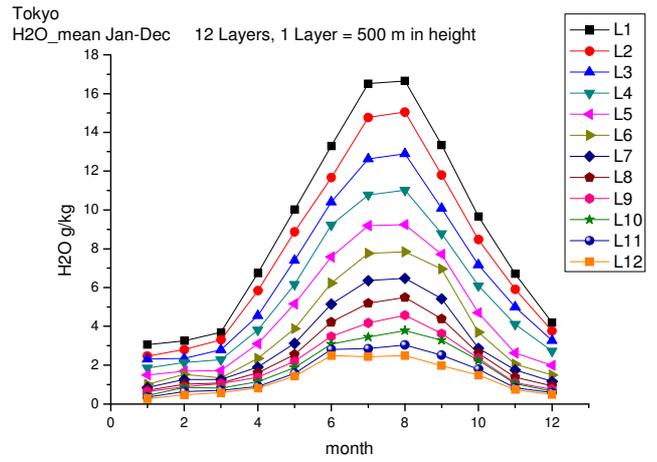
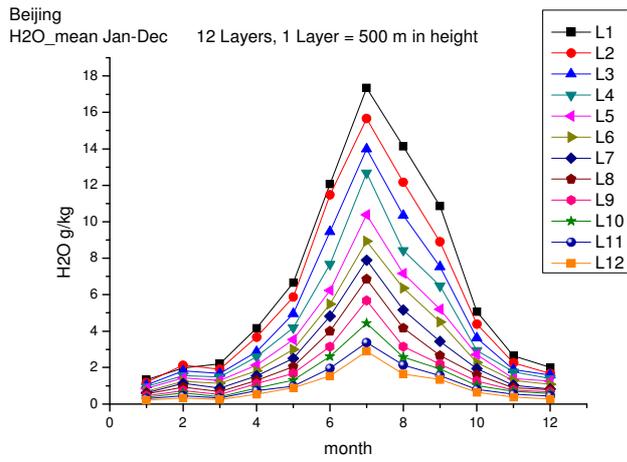
Die spezifische Feuchte (Abb. 4.34a - k) zeigt bei allen Flughäfen einen deutlichen Jahresgang mit Maximum im Sommer sowie von unten nach oben abnehmenden Konzentrationen. In den ostasiatischen Städten, besonders in Peking, ist das Maximum im Sommer sehr spitz und erreicht Konzentrationen von 18 g/kg im Juli in den bodennahen Luftschichten. In Tokyo liegen die Werte im Juli und August bei 17 g/kg, in Osaka zur gleichen Zeit über 18 g/kg. Shanghai erreicht 22 g/kg.

An der Ostküste der USA ist der Verlauf der Maximalwerte im Sommer weniger spitz ausgeprägt, und die Werte liegen bei 14 g/kg in Washington im Juli und August und 12 g/kg in New York im August. Das Maximum in Boston liegt ebenfalls mit 12 g/kg im August, allerdings liegt hier der Juni-Wert noch unter 10 g/kg, während in New York in den Monaten Juni bis August die Werte über 11 g/kg liegen. Im weiter südlich liegenden Atlanta liegen die Werte zwischen Juni und August um 14 g/kg. An den europäischen Flughäfen Frankfurt und Brüssel liegen die Höchstwerte mit 9 g/kg im August bzw. im Juli und August in Brüssel deutlich niedriger.

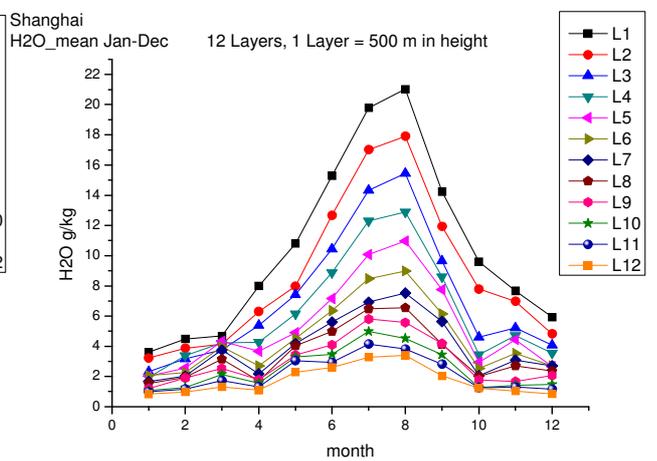
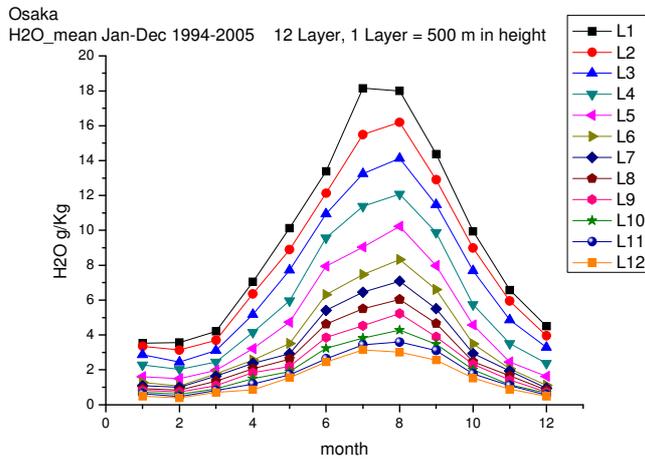
Die tropischen Flughäfen zeigen durchgängig aufgrund des hohen Gehaltes der Luftfeuchtigkeit einen weniger ausgeprägten Jahresgang, weisen jedoch auch zum Teil mehrere Maxima auf. In Hongkong existieren ein Frühsommer- und ein Spätsommermaximum mit einem Wasserdampfgehalt von 22 g/kg. Diese Doppelgipfligkeit des Jahresgangs ergibt sich aus einer ersten sommerlichen Regenzeit von April bis Juni, einem darauffolgenden starken Rückgang des Niederschlags und der dann im August/September einsetzenden „summer typhoon rainy season“ (Weischet/Endlicher 2000:491). Das Maximum in Sao Paulo liegt im Februar bei 18 g/kg im südhemisphärischen Sommer. Caracas als typischer vom Passatregime beeinflusster Standort weist insgesamt einen recht homogenen Jahresgang auf mit einem Minimum im März und einem Maximum von 22 g/kg im Oktober.

## 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

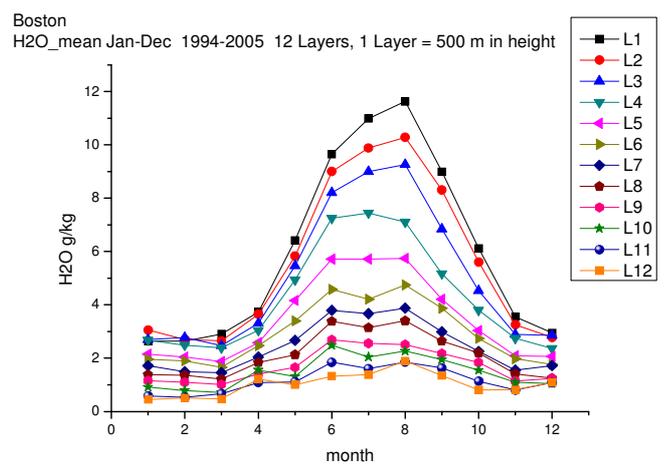
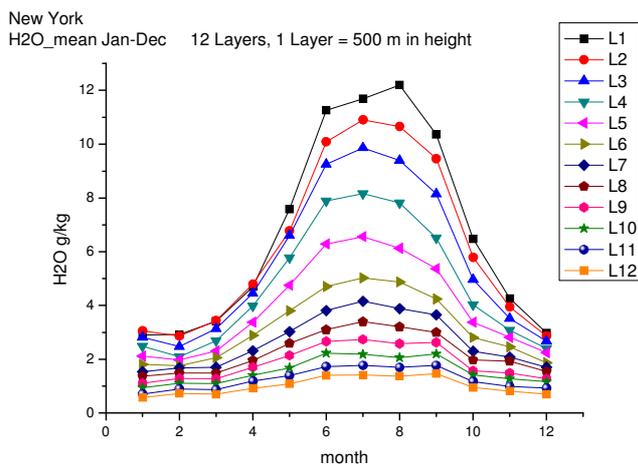
a)



c)

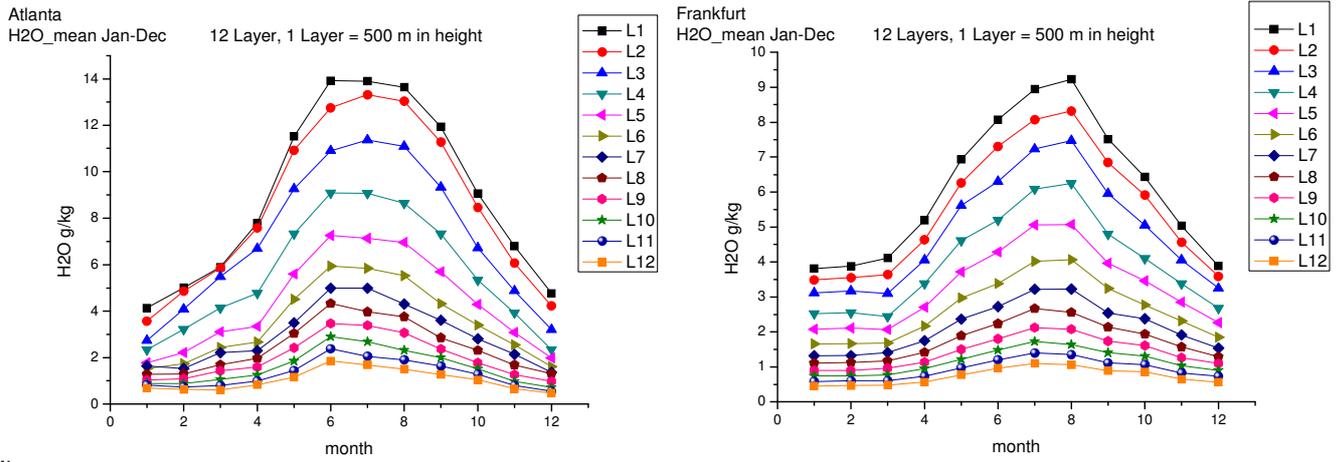


e)

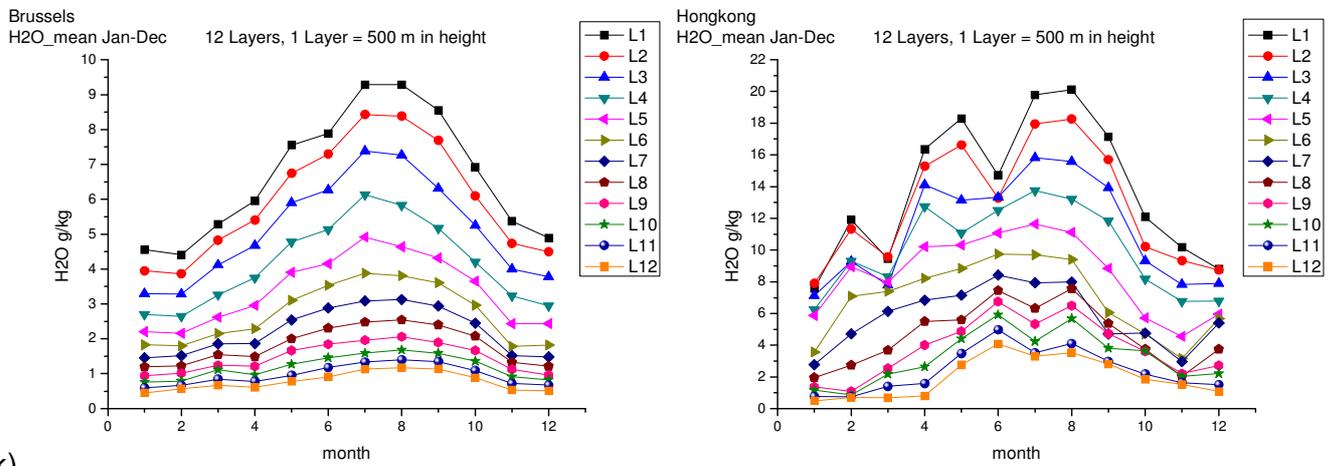


#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

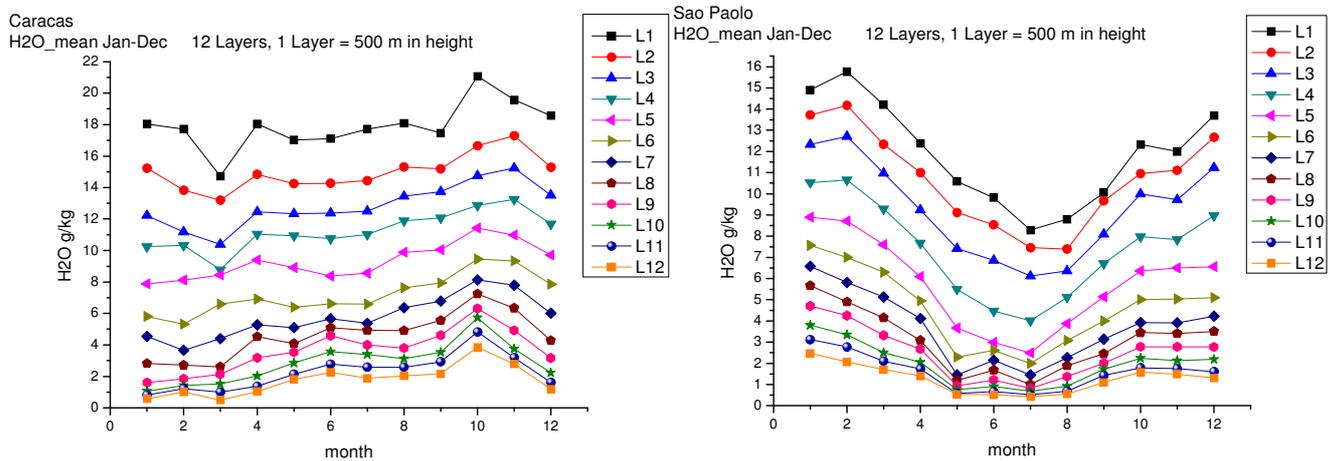
g)



i)



k)



**Abbildungen 4.34 a - l** Jahresgänge des Wasserdampf-Mischungsverhältnisses in g/kg von 500 bis 6000 Meter Höhe, gezählt L1 bis L12. a) Beijing, b) Tokyo, c) Osaka, d) Shanghai, e) New York, f) Boston, g) Atlanta, h) Frankfurt, i) Brussels, j) Hongkong, k) Caracas, l) Sao Paolo

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Die CO-Konzentrationen (Abb. 4.35a - l) weisen ebenfalls einen Jahresgang auf. Wie der in Kapitel 4.2 dargestellte Verlauf in der oberen Troposphäre über dem Atlantik dokumentiert, liegt das Maximum des langlebigen Kohlenmonoxids in dieser Höhe im Frühjahr. In Bodennähe nahe der Quellregionen ist der Jahresgang erheblich von Orographie und Windregime beeinflusst. Die US-amerikanischen Flughäfen an der Ostküste weisen in der freien Troposphäre ein flaches Frühjahrsmaximum auf. In den oberflächennahen Bereichen ist der Verlauf deutlich strukturierter. Die unterste Schicht zeigt ein Maximum von 340 ppb im Januar und ein weiteres mit 310 ppb im November für New York bzw. ein Maximum von 240 ppb im Dezember für Washington. Weiter oben ergeben sich zwei Minima im Mai und September. Letzteres lässt sich sowohl für New York als auch für Washington in allen Höhen nachweisen. In New York fällt in der bodennahen Schicht das CO-Minimum mit dem Ozonmaximum im August/September zusammen.

In Boston liegt in 500 Metern über Grund das Maximum bei 280 ppb, im April wird ein zweites mit 250 ppb erreicht. Im weiteren Jahresverlauf liegen die Werte um 200 ppb. Das im Mai erreichte Minimum in allen Schichten wird weiter oben von einem Anstieg mit erneutem Minimum im Juli bzw. September gefolgt.

Atlanta weist das Maximum der CO-Konzentration mit 280 ppb in Bodennähe im Februar auf. In den höheren Schichten liegt es im April. Die Minimalwerte in der freien Troposphäre liegen um 80 ppb in den Herbstmonaten und im Februar.

Tokyo weist von Januar bis Juni durchgängig hohe Werte zwischen 250 und 300 ppb auf. Auf das Sommerminimum um 220 ppb folgt ein erneuter Anstieg ab September, welcher in größeren Höhen kleineren Schwankungen unterlegen ist.

In Osaka werden Maximalwerte zwischen 350 und 400 ppb von März bis Juni erreicht, gefolgt von einem Sommerminimum um 250 ppb und einem erneuten Anstieg ab Oktober.

In Peking werden im Verlauf der Wintermonate in den beiden unteren Schichten Werte im ppm-Bereich erreicht. So liegt ein erstes Maximum im Oktober bei 2 ppm und ein zweites im Dezember bei 2,8 ppm. Oberhalb 1000 Meter liegen die Konzentrationen ganzjährig unterhalb 400 ppb. Hohe Werte unterhalb 1000 Meter werden auch in Shanghai erreicht. Hier erfolgt ein steiler Anstieg von Oktober bis Dezember, welcher in einem Maximum von 700 ppm gipfelt. In Shanghai liegen die Konzentrationen oberhalb 1500 Meter um etwa 200 ppb. Auch Hongkong weist in

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

den unteren Metern über Grund hohe Konzentrationen auf, das Maximum liegt im Januar mit 1 ppm, gefolgt von einem steilen Abfall, welcher sich bei 300 ppb einpendelt. Ein Anstieg erfolgt ab August.

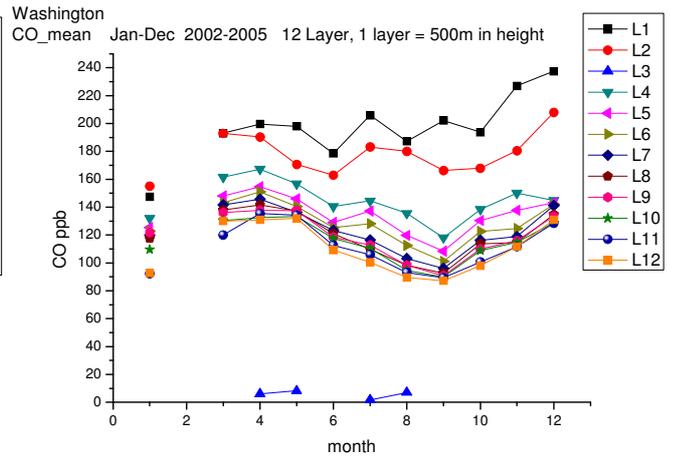
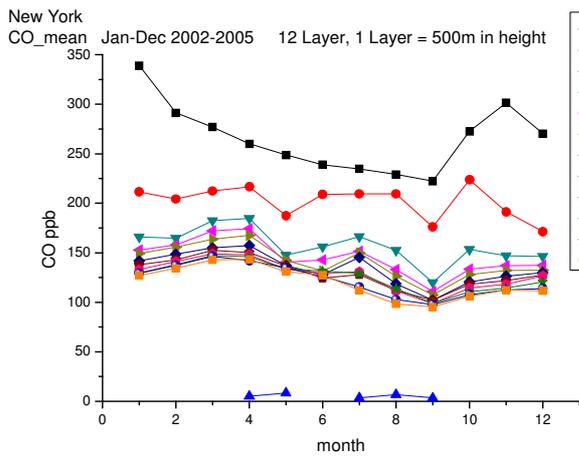
Frankfurt erreicht das Maximum der CO-Konzentration in Bodennähe mit 300 ppb im Dezember. Von November bis März liegen die Werte oberhalb 260 ppb. Das Minimum liegt bei 180 ppb im Juli. In den oberen Regionen erstreckt sich das Maximum über die Frühjahrsmonate mit etwa 130 bis 140 ppb. Um den Brüsseler Flughafen liegen die Maximalwerte mit 175 ppb im Februar in 1000 Metern Höhe. Das Minimum liegt dort im Juli mit 115 ppb. Im Oktober sinken in den oberen Schichten die Konzentrationen unterhalb 90 ppb.

Die CO-Konzentrationen in Caracas liegen ganzjährig zwischen 100 und 200 ppb. Ein Maximum, welches sich in allen Höhen durchsetzt, wird im April erreicht. Das Maximum in der untersten Luftschicht liegt mit 500 ppb im Oktober.

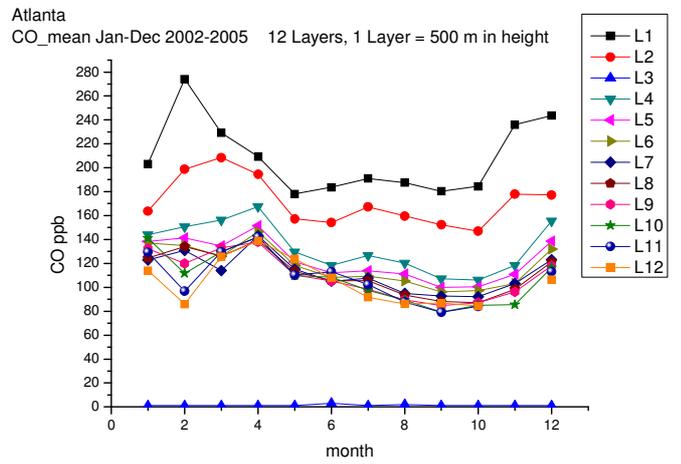
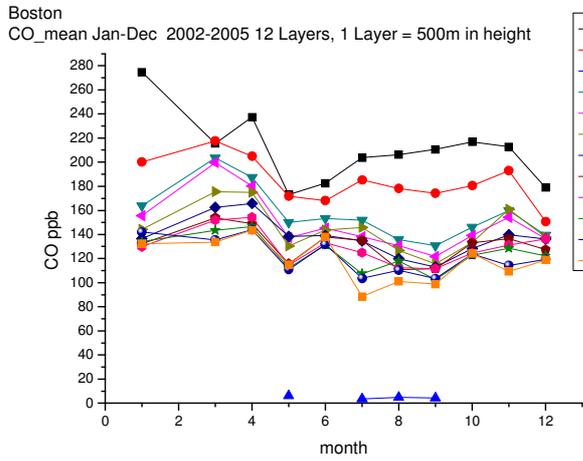
Bei allen CO-Jahresgängen fällt eine Anomalie der Messwerte in Schicht 3, 1500 Metern auf, für die weder in den Programmen noch in den Daten ein Erklärungsansatz gefunden wurde.

# 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

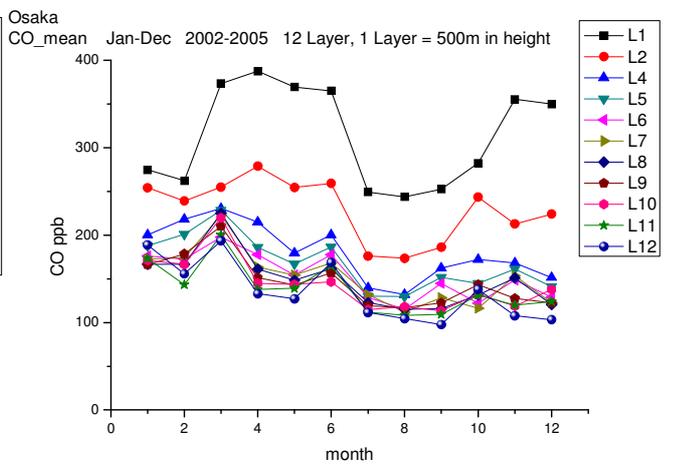
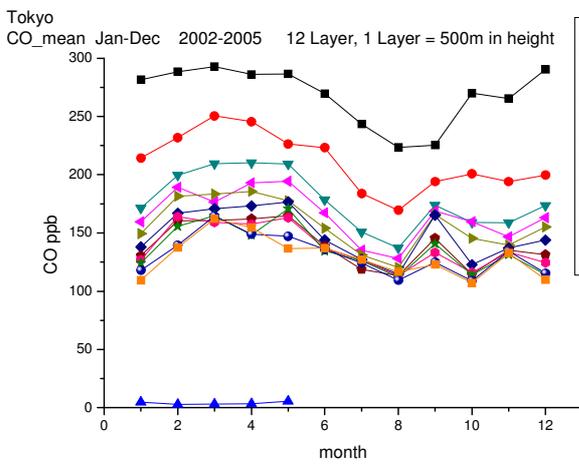
a)



c)

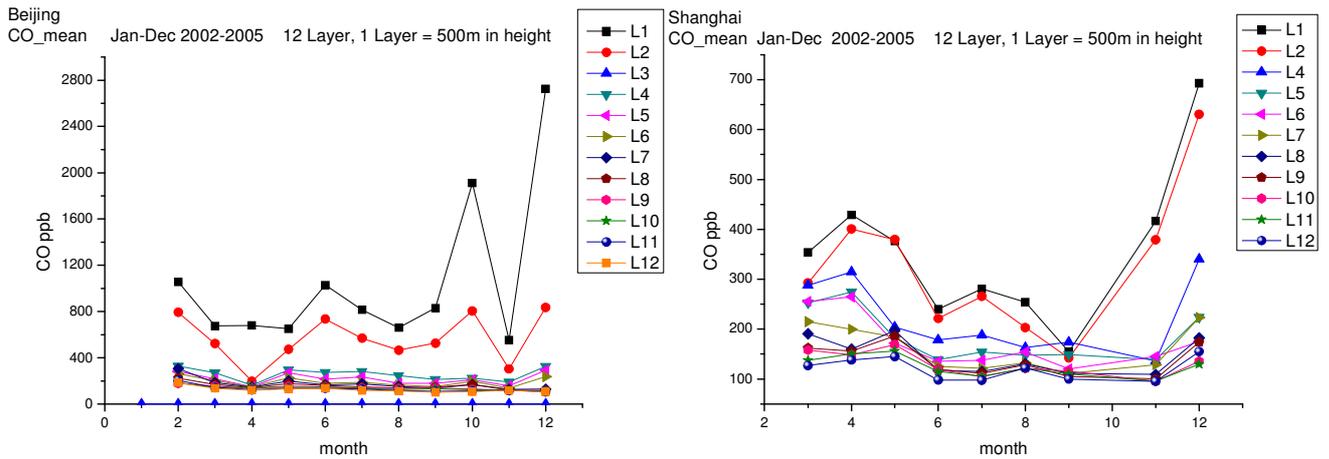


e)

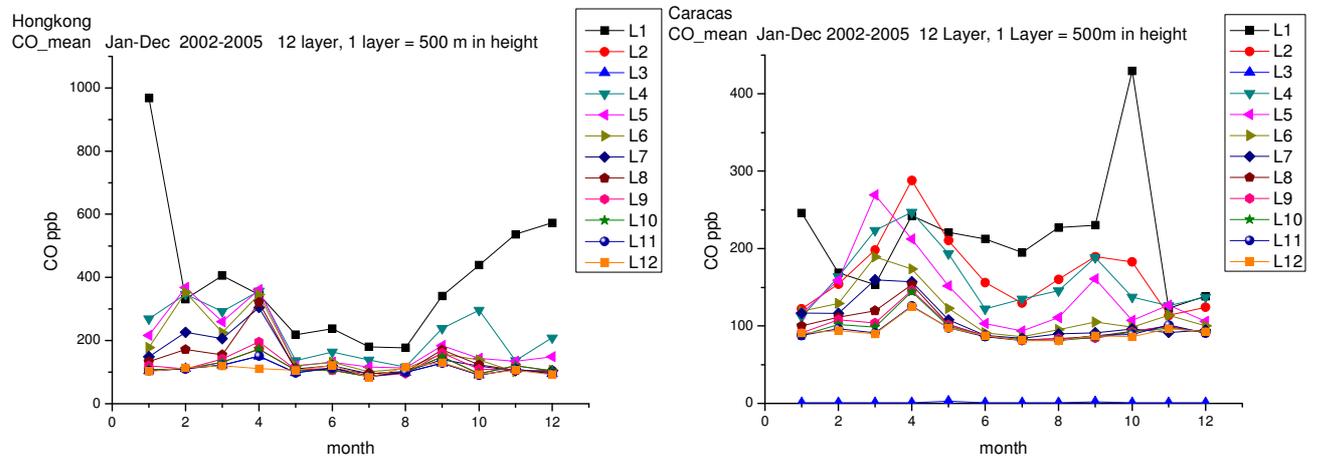


## 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

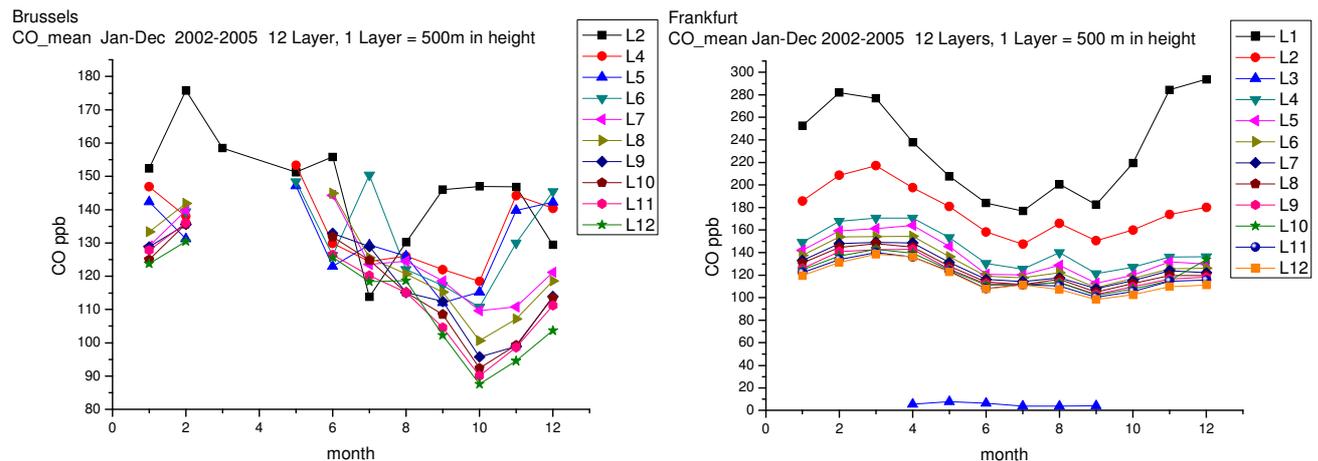
g)



i)



k)



**Abbildungen 4.35a - I** Jahressgänge der CO-Konzentration in ppb von 500 bis 6000 Meter, gezählt L1 bis L12 a) New York, b) Washington, c) Boston, d) Atlanta, e) Tokyo, f) Osaka, g) Beijing, h) Shanghai, i) Hongkong, j) Caracas, k) Brussels, l) Frankfurt

#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

Die Jahressgänge der Stickoxidkonzentration (Abb. 4.36a - h) wurden für die Flughäfen New York JFK, Washington, Tokyo, Osaka, Peking und Caracas ausgewertet. In allen Fällen liegen die höchsten Konzentrationen im Frühjahr in der bodennächsten Schicht, in den meisten Fällen in 1500 Meter über Grund.

New York weist ein Maximum Mai mit 8,5 ppb und eines im August mit 7 ppb auf. Im Juni liegen die Werte bis in 3000 Meter Höhe bei 6 ppb.

Der Verlauf des Jahresgangs in Boston gleicht dem in New York, allerdings werden weniger hohe Konzentrationen erreicht. Das Maximum im Mai liegt bei 6,5 ppb. Im August werden 5 ppb erreicht. Auch hier liegt im Mai in 5000 Metern Höhe die Konzentration mit 4 ppb noch verhältnismäßig hoch.

In Washington liegt das erste Maximum im Mai mit 9 ppb. Bis in Schichten von 4000 Meter Höhe liegen die Konzentrationen in diesem Monat über 6 ppb. Ein zweites Maximum wird im Spätsommer mit 8 ppb erreicht. In Atlanta liegt das Maximum bei 7,5 ppb im Juni in etwa 2000 Metern Höhe. Peking hat ein erstes Maximum mit 2,6 ppb im Mai und ein zweites mit 4,5 ppb im Juli. Diese Werte gelten für Höhenbereiche von 3000 Metern. In Tokyo liegen die Maxima in 1000 Meter über Grund bei 7 ppb im Januar und bei 9 ppb im März. Im Februar werden nur 2 ppb erreicht. Nur die genannten Monate sind für diese Höhe mit Daten belegt. Ein weiterer Anstieg in 1500 - 2000 Meter erfolgt im Mai, dessen Verlauf allerdings unterbrochen wird, da im Juni keine Daten zur Verfügung stehen. Die maximalen Werte in Frankfurt werden in allen Höhengschichten im Mai erreicht. In 1500 Metern Höhe liegt das Maximum bei 8 ppb. Ein zweites kleineres Maximum wird in höheren Schichten mit 3,5 ppb in 2000 Metern Höhe im August erreicht. Dieser Verlauf zeigt sich in allen Höhenniveaus und ist auch in 6000 Metern Höhe noch zu erkennen.

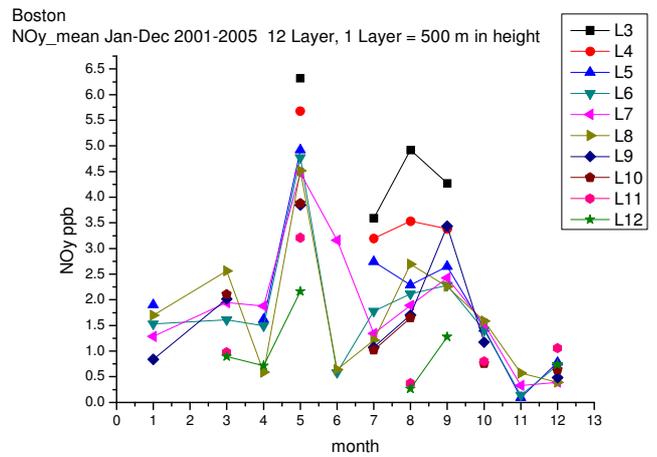
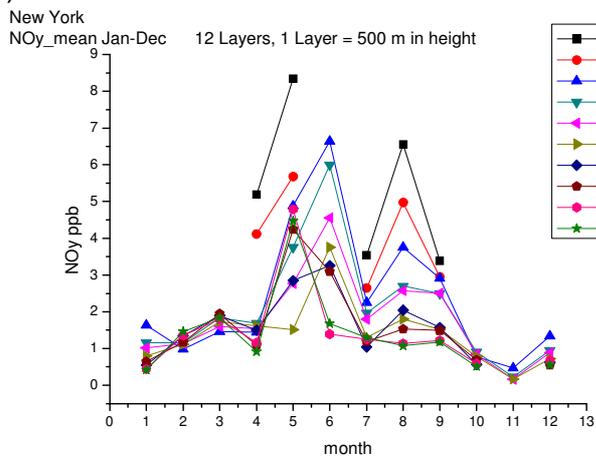
Caracas als einziger hier aufgeführter Tropenflughafen zeigt sehr hohe Konzentrationen. Die zur Verfügung stehenden Daten belegen ein Maximum von 12 ppb in 2000 Metern Höhe über Grund im Mai. In einem zweiten Maximum im September werden noch immer 8 ppb erreicht.

Nielsen et al. (1997) beschreiben das Verhältnis von  $\text{NO}_y$  zu Ozon dergestalt, dass der Anteil des  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO} + \text{NO}_2$ ) in ihren Untersuchungen von 79% bei 20 - 30 ppb Ozon auf 33% bei 50 - 60 ppb absinkt. Der  $\text{NO}_z$ -Anteil ( $\text{NO}_y - \text{NO}_x$ ) steigt hingegen von 21% auf 67% bei ansteigenden Ozonkonzentrationen. Dies führt zu dem Schluss, dass in den Jahressgängen der unteren Troposphärenschichten, in denen

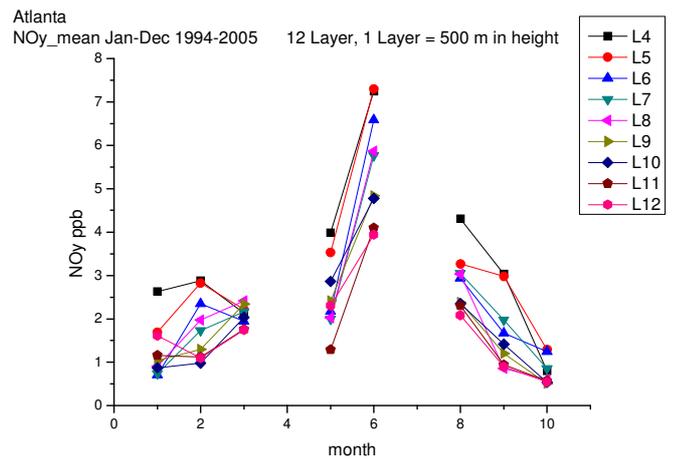
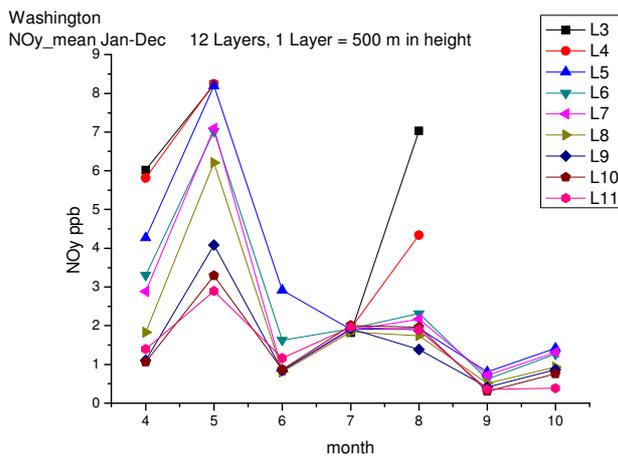
#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

sowohl bei Ozon als auch beim gemessenen  $\text{NO}_y$  das Maximum im Frühjahr liegt, der Anteil der Stickoxidverbindungen ohne  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$ , also  $\text{NO}_z$ , überwiegt. In Peking liegen sowohl Ozonmaximum als auch  $\text{NO}_y$ -Maximum im Sommer. Dies lässt wiederum auf einen geringen Einfluss von Blitz- und Gewittertätigkeit auf die  $\text{NO}_y$ -Konzentration in den unteren Troposphärenschichten schließen, da bei Blitzentladungen  $\text{NO}_x$  produziert wird.

a)

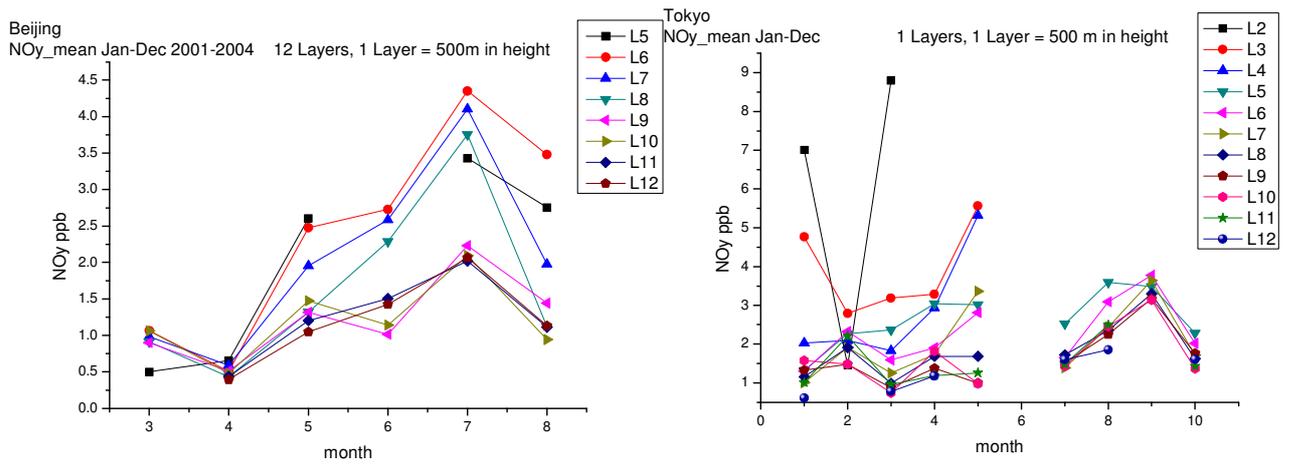


c)

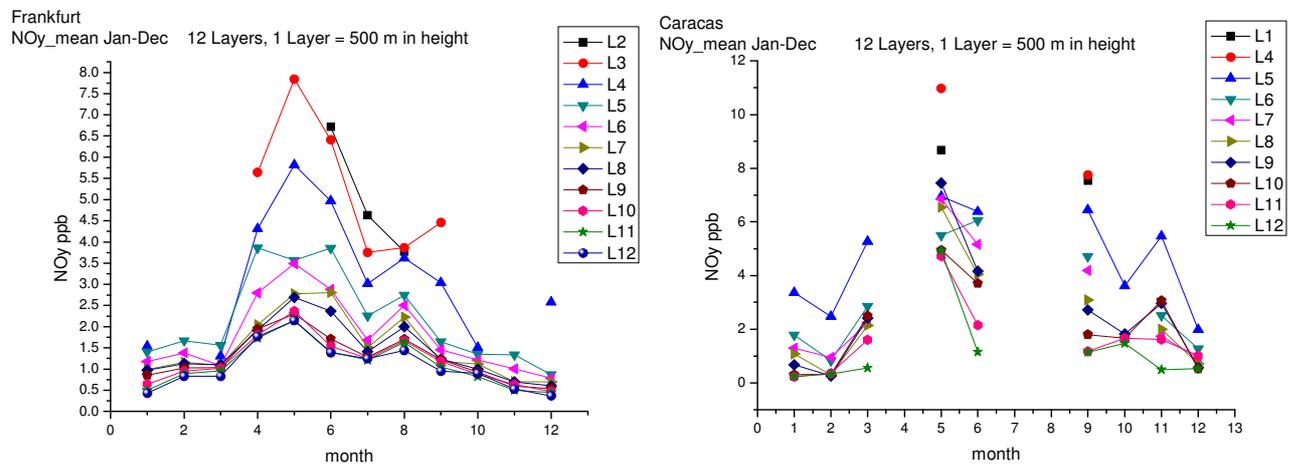


#### 4. Klimatologie der Spurengase in der Troposphäre

e)



g)



**Abbildungen 4.36a - h** Jahresgänge der Stickstoffkonzentrationen in ppb von 500 bis 6000 Meter, gezählt L1 bis L12. a) New York, b) Boston, c) Washington, d) Atlanta, e) Beijing, f) Tokyo, g) Frankfurt, h) Caracas

## 5. KLASSIFIZIERUNG DER MOZAIC-DATEN ANHAND VON WETTERLAGEN

Da die Jahresgänge der Spurengase deutliche zeitliche und räumliche Differenzierungen in den verschiedenen Regionen zeigen, ist es von Interesse, eine weitere Klassifizierung der Daten unabhängig der saisonalen Einteilung in die außertropisch-nordhemisphärischen Jahreszeiten Frühling (März, April, Mai), Sommer (Juni, Juli, August), Herbst (September, Oktober, November) und Winter (Januar, Februar, März) zu betrachten. Diese Klassifizierung setzt eine Breitenabhängigkeit der Konzentrationsverteilung nach rein solaren Kriterien voraus, eine Differenzierung nach Längengraden und synoptischen Einflüssen kann sie jedoch nicht erfassen. Wie in Kapitel 4 ausgeführt, zeigt die Klimazonierung besonders in den Außertropen eine stärker längengradorientierte Ausrichtung. Eine Möglichkeit zur Klassifizierung stellt die Trennung nach charakteristischen, wiederkehrenden Wettertypen dar. Erste Klassifizierungsansätze gehen auf Lamb (1950) zurück, der eine Klassifizierung der sieben vorrangigen Wetterlagen für die Britischen Inseln vorgelegt auf der Basis der Windrichtung der Luftmassen und Druckmustern und täglichen Wetterkarten seit 1873 (Lamb 1950 in Barry 1998, S. 190ff.).

Für Europa existiert der Katalog für Wetterlagen nach Hess und Brezowsky (1952) und überarbeitet und erweitert durch Gerstengarbe, Werner und Rüge (1999) für die Jahre 1881 bis 1998, in dem eine Großwetterlage als „mittlere Luftdruckverteilung eines Großraumes, mindestens von der Größe Europas während eines mehrtägigen (mindestens dreitägigen) Zeitraumes“ definiert ist (Gerstengarbe et al. 1999). Darin sind 29 Großwetterlagen den drei Zirkulationsformen zonal, gemischt und meridional und weiterhin sechs zusammenfassenden Großwettertypen untergeordnet. Bodendruckkarten und später auch 500-hPa-Druckniveauekarten wurden täglich ausgewertet, und damit konnte jeder Tag des genannten Zeitraumes einer Großwetterlage zugeordnet werden. Diesen zeitaufwendigen Methoden folgten automatische Klassifikationen basierend auf quantitativen Algorithmen.

Für die USA, wo MOZAIC-Daten in hoher Dichte sowohl in vertikaler als auch in horizontaler Auflösung vorliegen, existieren ebenfalls einige Klassifizierungsansätze,

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

die eine Basis für vergleichende Untersuchungen bieten (Kalkstein et al. 1996). Sheridan hat 2002 eine Synoptic Scale Classification (SSC) entwickelt, die auf der Basis täglicher individuell an den Bodenstationen gemessener verschiedener Parameter eine Luftmassentypisierung vornimmt (Sheridan 2002). Daraus entstehen sieben verschiedene Wettertypen, die regional unterschiedliche Auswirkungen haben. Vrac 2007 verwendet zwei verschiedene Clustermethoden, um aus Luftdruckdaten des NCEP/NCAR-Datensatzes für den Zeitraum 1994 bis 1999 charakteristische Zirkulationsformen über dem Osten der USA zu finden. Die beiden Zeitreihen jeweils aus dem hierarchischen Clusteransatz und dem Expectation-Maximation-Ansatz wurden verwandt, um aus dem MOZAIC-Datensatz Wasserdampf- und Ozondaten zwischen 1994 und 1999 auf Ihre Unterscheidbarkeit nach Zirkulationsmustern zu untersuchen.

Die begrenzte Verfügbarkeit von Zeitreihen zur Untersuchung der relevanten MOZAIC-Variablen zwischen 1994 und 2005 führte zur Anwendung eines alternativen objektiven Klassifikationsverfahrens, der Self-organising Maps (SOM).

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

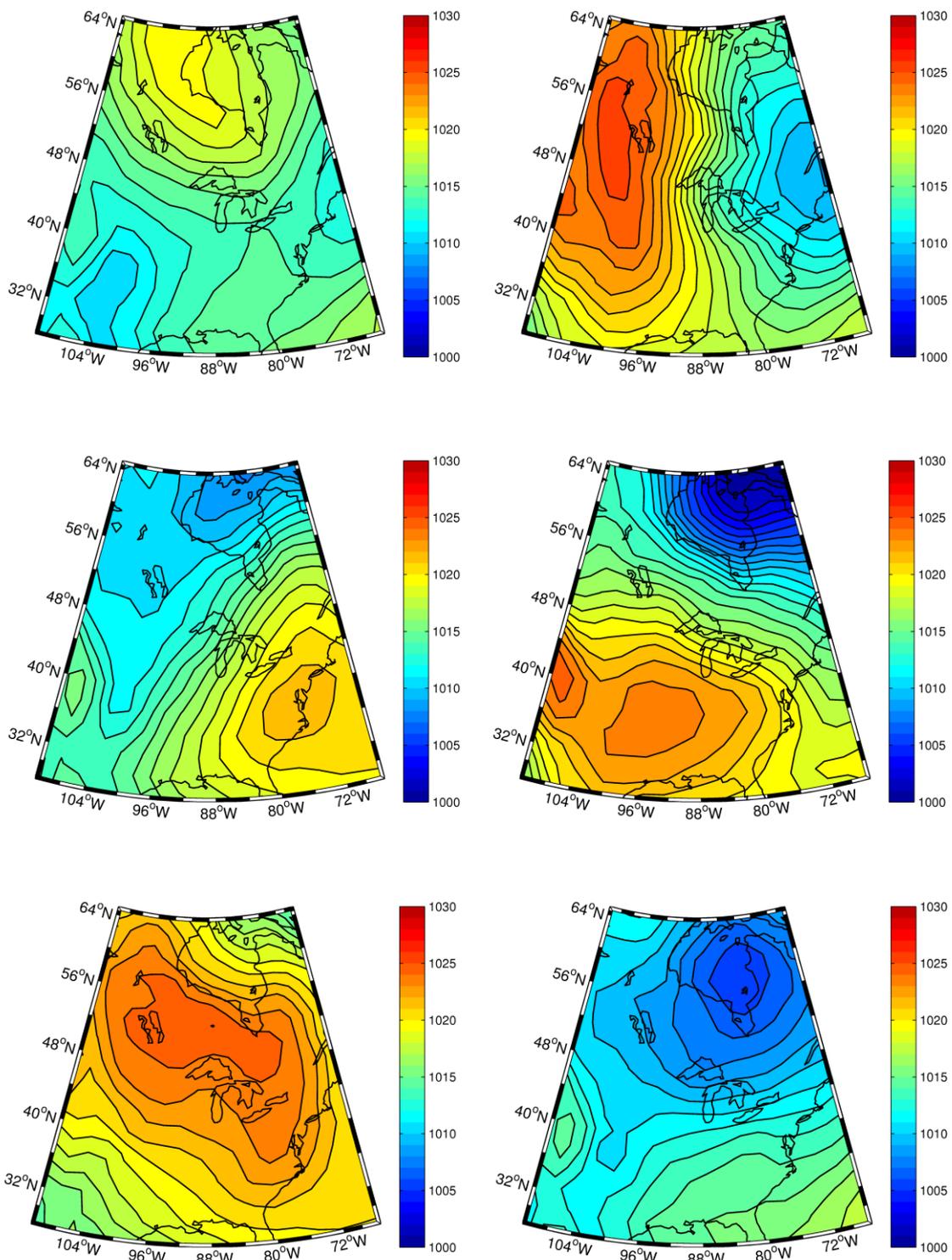
### 5.1 WETTERLAGENKLASSIFIKATION ANHAND VON SELF-ORGANISING MAPS

Die in Kap. 5 beschriebenen Klassifizierungsmethoden gruppieren Fälle, Entitäten, hier Wetterlagen, so dass die Eigenschaften verschiedener Gruppen maximale Ähnlichkeiten aufweisen (Huth 2008). Eine Charakterisierung des Kontinuums der Atmosphäre wird durch die Einteilung in Regionen vorgenommen, welche ähnliche zeitliche oder statistische Eigenschaften aufweisen. Solche Ähnlichkeiten werden meist über metrische Maße definiert, z.B. die euklidische Distanz. Die Einteilung in klar abgegrenzte Klassen reduziert daher in starkem Maß die Variabilität und führt zu einem Informationsverlust (Hewitson und Crane 2002). Diese zweckmäßigen Vereinfachungen stellen eher eine Vereinfachung der Realität dar als die wahre physikalische Realität. In diesem Sinne gibt es keine allgemeingültige Klassifizierung, sondern jeweils eine auf den aktuellen Fall anwendbare. Eine spezielle Gruppe von Klassifizierungsansätzen bilden die nichtlinearen Ansätze auf Basis von Neuronalen Netzwerken. Eine in der synoptischen Klimatologie häufig verwendete Methode, die sogenannten Self-organizing maps (SOMs), gehören zu dieser Gruppe. Der 1990 von Kohonen entwickelte Ansatz wurde das erste Mal von Hewitson and Crane (2002) in der synoptischen Klimatologie eingesetzt (Hewitson and Crane 2002). Cassano et al. (2005) wenden die Methode zur Klassifizierung synoptischer Zirkulationsmuster in der westlichen Arktis an. Lynch et al. (2006) untersuchen mithilfe von Self-organizing Maps Veränderungen in den Zirkulationsmustern der antarktischen Polarregionen im 20. und 21. Jahrhundert. Die in dieser Arbeit verwendete Klassifikation wurde von Sauter (2007) unter Anwendung von Self-organising Maps erstellt. SOM zählen zu den objektiven Klassifizierungsverfahren, die unter Verwendung von Ähnlichkeitsmaßen (Maximierung der „within-type“-Ähnlichkeit). Im Gegensatz zu klassischen Clusterverfahren (z.B. k-means), welche Regionen abgrenzen, werden hier charakteristische Prototypen (Vektoren) gesucht, die eine bestimmte Region im Datenraum abbilden. Diese Prototypen werden meist in einem 2D oder 3D Gitter abgebildet, um den multidimensionalen Datensatz zu visualisieren. Die Stärke dieser Methode besteht darin, einen multidimensionalen Eingabedatensatz auf wenige Dimensionen zu reduzieren. Bei dieser Methode handelt es sich um ein unüberwachtes Klassifikationsverfahren, welches einen Datensatz auf Ähnlichkeitsmuster und Nachbarschaftsfunktionen überprüft und die Daten in

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

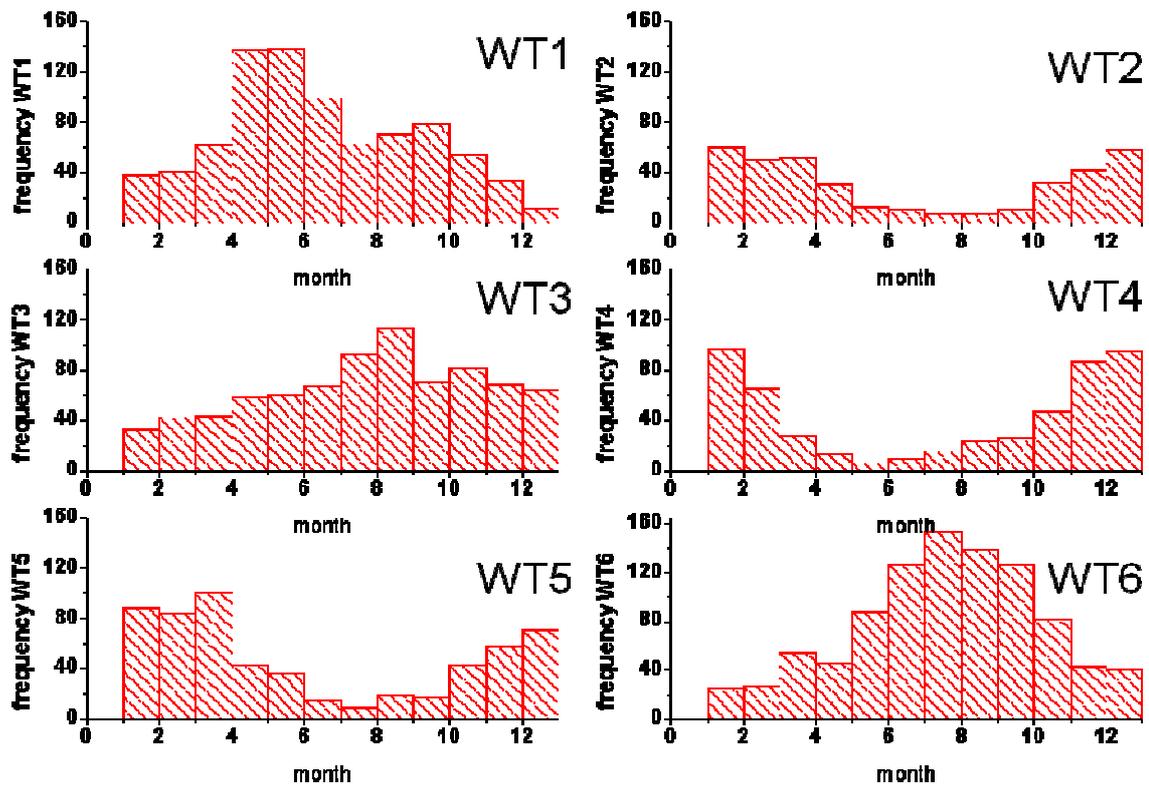
Gruppen teilt (Lippe 2006:209). Die SOM-Methode reduziert den multidimensionalen NCEP/NCAR-Eingabedatensatz auf das charakteristische Muster der Druckfelder. Als Eingangsdaten wurden Luftdruckdaten von NCEP/NCAR (Kalnay et al. 1996) für den Zeitraum August 1994 bis August 2005 im Bereich  $26^{\circ}$  bis  $65^{\circ}$ N und  $67^{\circ}$  bis  $110^{\circ}$ W für das Meeresniveau in täglicher Auflösung genutzt. Das NCEP/NCAR-Gitternetz hat eine Auflösung von  $2.5^{\circ}$ , wobei die Datenpunkte die Basis eines n-dimensionalen Koordinatensystems bilden. Jedes tägliche Druckfeld kann damit eindeutig durch einen n-dimensionalen Vektor in diesem Koordinatensystem zugeordnet werden. Vor dem Clustern werden die Daten standardisiert, um Datenpunkte mit großen absoluten Werten nicht über zu bewerten. Anschließend werden entlang der ersten n-1 Hauptkomponenten *nodes* (Vektoren) initiiert, welche schließlich die Cluster-Zentren bilden. Jeder *node* ist durch einen n-dimensionalen Vektor repräsentiert, d.h. für jeden *node* existiert ein Vektor in der gleichen Dimension wie der Eingabedatensatz (Hewitson und Crane 2002). In einem iterativen Prozess wird zufällig einer der Datenpunkte (Tag) ausgewählt und der euklidische Abstand zwischen allen *nodes* und dem Tag berechnet. Die *nodes* passen ihre Position iterativ an, indem sie versuchen, den Abstand zu den nächst umliegenden Vektoren zu minimieren. Nach einigen tausend Iterationsschritten existieren nun n-1 Cluster. Einige dieser Clusterzentren sind sich sehr ähnlich und können durch nur einen *node* wiedergegeben werden (Lippe 2006:210). Self-organising Maps besitzen neben der Ähnlichkeitsfunktion auch eine Nachbarschaftsfunktion. Wieder wird ein Gewinner-*node* bestimmt mit dem minimalsten Abstand zwischen Eingabe- und Gewichtsvektor. Durch das Trainieren wird nicht nur der Gewichtsvektor des Gewinner-*nodes* verändert, sondern auch diejenigen Vektoren, die „in einer definierten topologischen Nachbarschaftsbeziehung zu ihm stehen“ (Lippe 2006:210). Schließlich wurden die Cluster mithilfe des k-means-Verfahrens noch einmal zusammengefasst. Es entstanden sechs Zirkulationismuster, die in Abb. 5.1 dargestellt sind.

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen



**Abbildung 5.1** Druckmuster der sechs Wetterlagen über dem Osten der USA 1994 – 2005 aus SOM, SLP

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen



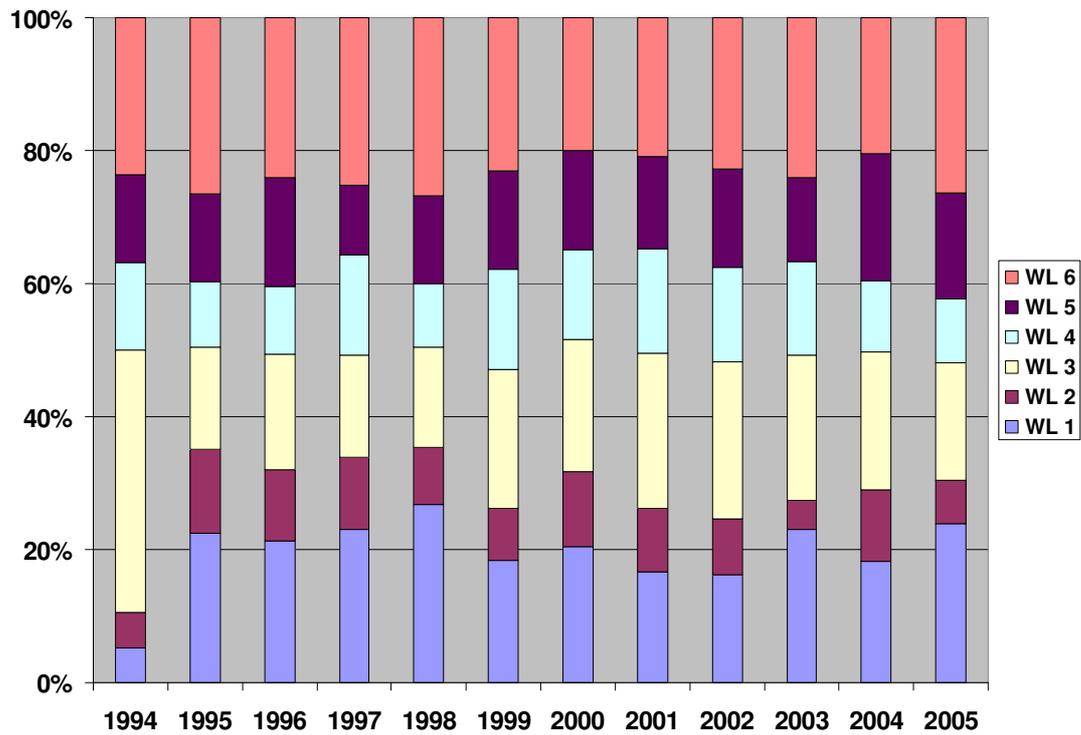
**Abbildung 5.2** Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen aus SOM für den Zeitraum 1994 - 2005, verteilt nach Monaten (eigene Darstellung, nach der Klassifikation von Sauter 2007)

Die Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen über das Jahr ist in Abb. 5.2 dargestellt. Demnach treten die Zirkulationstypen 1, 3 und 6 vornehmlich im Sommer auf, während die Zirkulationstypen 4, 5 und 6 gehäuft im Winter vorkommen.

Die Zeitreihen der sechs Wetterlagen über den elfjährigen Beobachtungszeitraum zeigen ein konstantes Auftreten der einzelnen Zirkulationsmuster (vgl. Abb. 5.3). Es sind kaum Variationen zu beobachten. Das Jahr 1994 ist nur ab August erfasst und das Jahr 2005 nur von Januar bis einschließlich August.

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

Zeitreihe der 6 Wetterlagen Sauter SLP 1994-2005



**Abbildung 5.3** Zeitreihen der sechs Wetterlagen aus Self-Organising Maps von August 1994 bis August 2005 (eigene Darstellung, nach der Klassifikation von Sauter 2007)

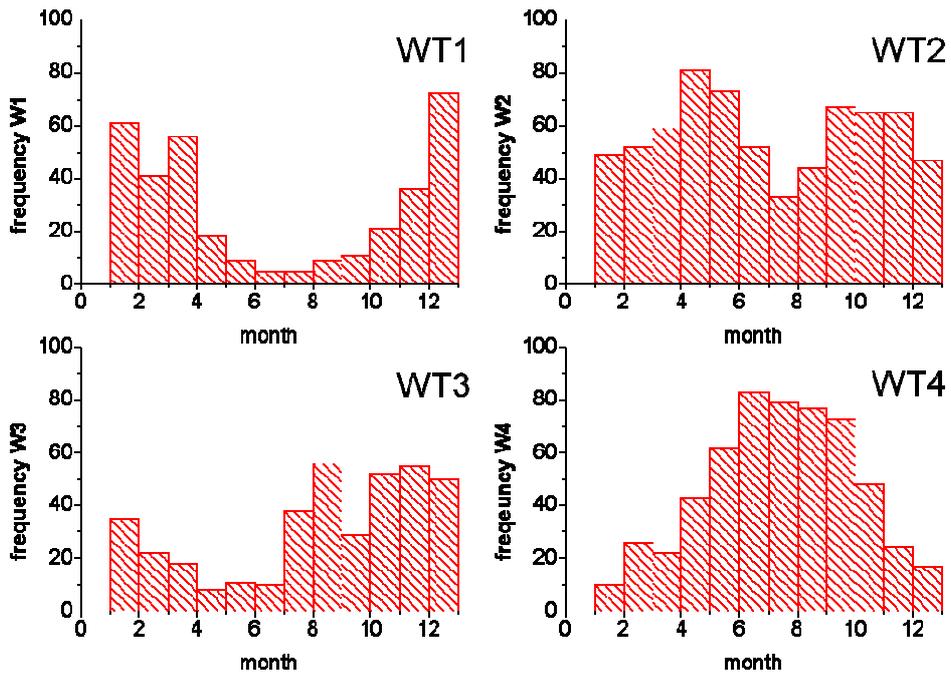
## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

### 5.2 VERGLEICH DER AUS SOM ABGELEITETEN WETTERLAGEN MIT WETTERLAGENKLASSIFIKATIONEN AUS EINER HIERARCHISCHEN CLUSTERANALYSE (HAC) UND EINEM EXPECTATION-MAXIMATION-ANSATZ (EM)

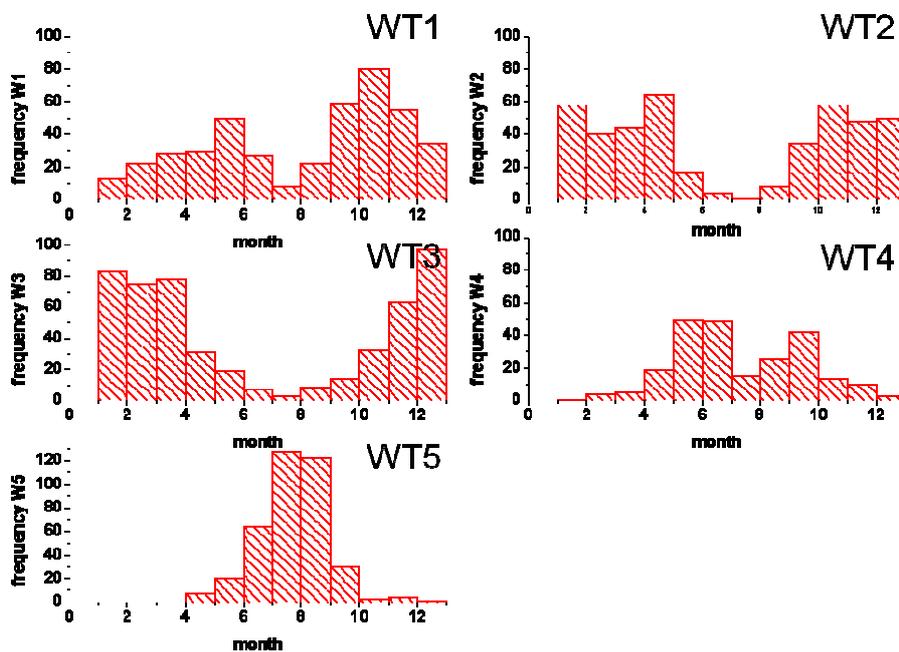
Zum Vergleich mit der Klassifikation durch Self-Organising Maps (SOM) wurden zwei weitere Klassifikationen für den Vergleichszeitraum 08/1994 bis 12/1999 und die gleiche Region (26° bis 65°Nord und 67° bis 110°West) untersucht. Die Klassifikationen basieren auf den von Vrac et al. (2007) beschriebenen Verfahren einer Hierarchischen Clusteranalyse (HAC) und des Expectation-Maximation-Ansatzes (EM). Vrac hat für die Anwendung in dieser Arbeit die beiden Clusterverfahren noch einmal für den Vergleichszeitraum angewandt und die Zeitreihen zum Vergleich mit der SOM-Klassifikation bereitgestellt. Als Eingabedaten dienten ebenfalls die Bodendruckdaten des NCEP/NCAR-Reanalyse-Datensatzes in täglicher 2.5 mal 2.5 Grad Auflösung. Danach findet Vrac nach dem hierarchischen Ansatz vier Cluster und nach dem Expectation-Maximation-Ansatz fünf Cluster. Die Häufigkeiten des Auftretens der Klassen sind in Abb. 5.4 und 5.5 dargestellt. Zum direkten Vergleich der Klassifikationen wurden die Klassen aus Self-organising Maps für den gleichen Zeitraum, für den die Vrac'schen Klassen vorliegen, August 1994 bis einschließlich Dezember 1999, neu klassifiziert. Die Häufigkeitsverteilung nach Monaten ist in Abb. 5.6 dargestellt.

Die Kreuztabellierung in Tab 5.1 zeigt den Vergleich des Auftretens der 6 Wetterlagen aus SOM mit den 5 Zirkulationstypen von Vrac nach dem EM-Ansatz. SOM # 6 und EM # 5 zeigen eine Gemeinsamkeit, ebenso wie SOM # 1 und EM # 4, SOM # 6 und EM # 4 und SOM #1 und EM # 2. Allerdings gibt es nie eine Übereinstimmung über 40 Prozent zwischen zwei Wetterlagen. Zwischen der SOM-Methode und der HAC-Methode gibt es größere Übereinstimmungen (s. Tab.5.1) Wetterlage 6 aus SOM wird zu 75.41 Prozent durch Wetterlage 4 aus HAC repräsentiert. Die Übereinstimmung zwischen HAC und EM in Tab. 5.3 liegt in der Mitte zwischen SOM und EM mit schlechter Übereinstimmung und HAC und SOM mit guter Übereinstimmung.

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

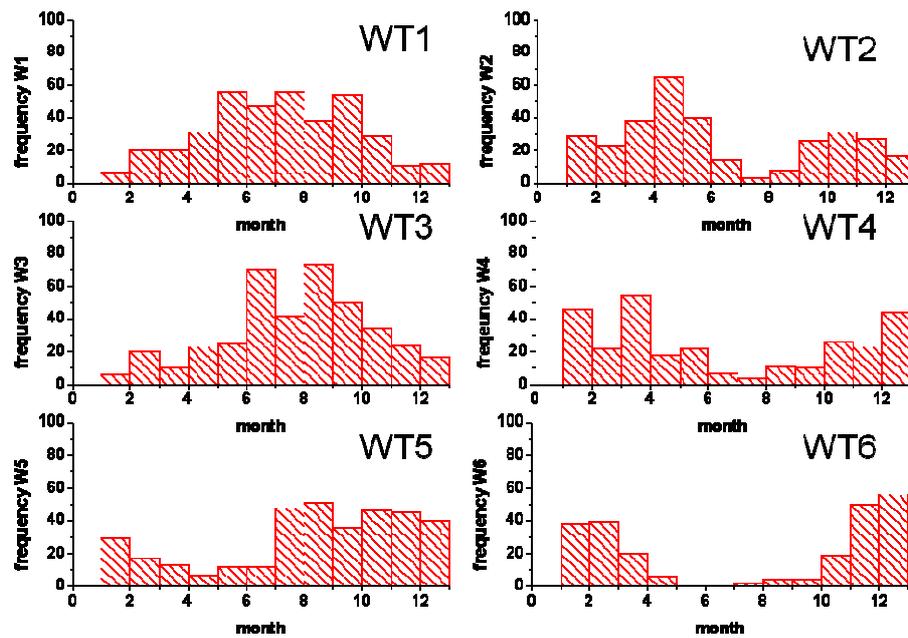


**Abbildung 5.4** Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen aus HAC für den Zeitraum 1994-1999, nach Monaten (eigene Darstellung, nach der Klassifikation von Vrac 2007)



**Abbildung 5.5** Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen aus EM für den Zeitraum 1994-1999, nach Monaten (eigene Darstellung, nach der Klassifikation von Vrac 2007)

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen



**Abbildung 5.6** Häufigkeit des Auftretens der Wetterlagen aus SOM für den Zeitraum 1994-1999, nach Monaten (eigene Darstellung, nach der Klassifikation von Sauter 2007)

**Tabelle 5.1** Kreuztabelle der aus SOM und aus EM abgeleiteten Wetterlagen, prozentuale Anteile: rot > 25%, grün 15 - 25%, blau < 15%

som/em	1	2	3	4	5
1	17.29	34.19	8.63	38.30	18.73
2	7.48	14.75	15.88	3.40	3.17
3	23.60	11.94	12.94	15.74	26.12
4	15.65	9.84	20.39	0.43	7.92
5	11.92	12.41	25.88	5.53	5.01
6	24.07	16.86	16.27	36.60	39.05
summe	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

**Tabelle 5.2** Kreuztabelle der aus SOM und aus HAC abgeleiteten Wetterlagen, prozentuale Anteile: rot > 25%, grün 15 - 25%, blau < 15%

hac/som	1	2	3	4	5	6
1	3.53	35.20	2.26	31.56	65.30	0.00
2	70.12	59.18	33.62	14.34	30.60	7.52
3	1.65	1.53	42.37	52.87	4.10	17.07
4	24.71	4.08	21.75	1.23	0.00	75.41
summe	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00

**Tabelle 5.3** Kreuztabelle der aus HAC und aus EM abgeleiteten Wetterlagen, prozentuale Anteile: rot > 25%, grün 15 - 25%, blau < 15%

hac/em	1	2	3	4	5
1	13.79	16.39	36.67	2.55	5.80
2	32.94	47.54	28.24	40.43	27.44
3	27.57	12.18	20.59	5.96	25.07
4	25.70	23.89	14.51	51.06	41.69
summe	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00

Nach Auswertung aller drei Wetterlageklassifikationen lässt sich feststellen, dass alle drei von den Jahreszeiten überprägt sind. Ein Maß für die Übereinstimmung der Wetterlagen stellt der Rand-Index als Maß an. Dieser untersucht beim Vergleich zweier Klassifikationen, ob sich ein Objektpaar mit den Verfahren A und B beide Male im selben (a), beide Male in verschiedenen (d) oder einmal im gleichen und das andere Mal in verschiedenen Klassen befindet (b und c) (Rand 1971 in Eckey et al. 2002:271).

$$RI_c = \frac{a + d}{\binom{n}{2}} \quad [40]$$

Mit a = Objektpaare, die beide Male in gleiche Cluster gruppiert wurden und d = Objektpaare, die beide Male in unterschiedliche Cluster gruppiert wurden. Da die hier verglichenen Wetterlagen-Cluster bei jedem der drei Klassifikationen eine andere Gesamtzahl aufweisen, muss eine Korrektur durch  $f_c$  eingeführt werden (Eckey 2002:271; vgl. Morey und Agresti 1984).

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

$$f_c = \frac{n(n^2 + 1) - (n + 1) \sum_{g=1}^G n_g^2 - (n + 1) \sum_{h=1}^H n_h^2 + 2 \sum_{g=1}^G \sum_{h=1}^H n_g^2 n_h^2 / n}{2(n - 1)} \quad [41]$$

Mit  $G$  = Anzahl Cluster der einen Klassifikation und  $H$  Anzahl Cluster der anderen Klassifikation.  $n_g$  und  $n_h$  ergeben sich aus der Kreuztabellierung der beiden Objektpaare. Der Korrekturfaktor  $f_c$  wird jeweils im Zähler und im Nenner subtrahiert.

$$RI_c = \frac{a + d - f_c}{\binom{n}{2} - f_c} \quad [42]$$

Der Rand Index liegt im Wertebereich zwischen 0 (keine Übereinstimmung) und 1 (bestmögliche Übereinstimmung). Für den Vergleich der Klassifikationen SOM und EM ergibt sich ein korrigierter (Adjusted) Rand Index von 0,037, für den Vergleich zwischen SOM und HAC ein Adjusted Rand Index von 0,251 und für den Vergleich der beiden Vrac'schen Klassifikationen HAC und EM ein Wert von 0,036. Dies spiegelt das Ergebnis der Kreuztabellierung wider. Die Übereinstimmung der Wetterlagen ist schwach. Die größte Übereinstimmung besteht zwischen der SOM- und der HAC-Klassifizierung.

Dieses Ergebnis stellt allerdings kein Urteil über die Güte der Klassifikationen dar. Im Rahmen der EU COST-Aktion 733 "Harmonisation and Application of Weather Type Classifications for European Regions" werden aktuell verschiedene Methoden zur automatischen Zirkulationsklassifikation auf tägliche nordatlantisch-europäische Bodenluftdruckfelder angewendet und verglichen. Ziel dieser COST-Aktion ist es, eine SLP-bezogene Klassifikationsgüte und Trennschärfe für bestimmte Zielvariablen zu finden. Dazu wurden 73 Klassifikationsverfahren, basierend auf 16 verschiedenen automatischen Klassifikationsverfahren und sechs manuellen Klassifikationsansätzen, ausgewertet. Datengrundlage waren ERA40-Reanalyse-daten des Bodenluftdrucks für den Zeitraum 09/1957 – 08/2002. Zur Untersuchung der Ähnlichkeitsbeziehungen zwischen den Klassifikationen wurde unter anderem der Rand-Index zur Quantifizierung der Trennschärfe der Klassifikationen verschiedener Variablen, u.a. auch dem Bodendruck. Es zeigten sich ausgeprägte Unterschiede zwischen den Klassifikationsergebnissen sowohl beim Vergleich konzeptionell

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

unterschiedlicher als auch methodisch verwandter Klassifikationsansätze. Zum jetzigen Zeitpunkt lassen sich keine eindeutigen Schlussfolgerungen hinsichtlich einer generell zu favorisierenden Klassifikationsmethodik ableiten (Huth 2008, Beck und Philipp 2008).

Nach den drei Klassifikationen wurden MOZAIC-Daten im Vertikalprofil – Mittelwerte für fünf Höhenbereiche - aufgetragen. Für den Zeitraum 1994 - 1999 liegen aus dem MOZAIC-Datensatz nur Ozon- und Wasserdampf-Daten vor. Die einfließenden Spurengasdaten wurden im Umfeld der in Tabelle 5.1 dargestellten Flughäfen gesammelt. Die Anzahl der gewonnenen Profile im MOZAIC-Programm entspricht dem Stand August 2005.

Die Daten wurden über die gesamte Region ( $26^{\circ}$  bis  $65^{\circ}$ N und  $67^{\circ}$  bis  $110^{\circ}$ W) und über fünf Höhengniveaus gemittelt. Das erste Niveau liegt in den unteren 500 Metern über Grund, wo die Daten immer innerhalb der planetaren Grenzschicht liegen, die Dynamik von der Bodenreibung beeinflusst ist und die Quellen der Vorläufersubstanzen von troposphärischem Ozon liegen, sowie Wasserdampf aus Verdunstungsprozessen entstanden ist. Ein weiteres ausgewähltes Stockwerk ist der Übergang in die freie Troposphäre zwischen 2500 und 3000 Metern. Dann folgt der Bereich der freien Troposphäre mit den Niveaus 3000 bis 4500 und 4500 bis 6000 Metern und schließlich die von Austauschprozessen mit stratosphärischen Luftmassen geprägte Tropopausenregion in 8000 bis 10000 Metern Höhe. Damit unterliegen das unterste und das oberste Niveau zusätzlichen thermischen bzw. dynamischen Einflussfaktoren. Abbildung 5.7 zeigt die Vertikalprofile für Ozon und Abbildung 5.8 für die spezifische Feuchte, separiert nach der Klassifikation HAC von Vrac.

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

**Tabelle 5.4** Liste der MOZAIC-Flughäfen im Bereich USA-Ost, Stand August 2005

Name	Longitude	Latitude	Number of profiles (08/2005)
Atlanta	-84.42	33.63	1516
Boston	-71.01	42.36	1031
Charlotte	-80.95	35.21	48
Chicago	-87.91	41.97	1284
Cincinnati	-84.67	39.05	311
Dallas	-97.03	32.9	1171
Denver	-104.64	39.88	39
Detroit	-83.36	42.22	295
Houston	-95.35	29.97	865
Montreal	-73.76	45.47	344
New York	-73.78	40.63	3292
Philadelphia	-75.22	39.88	113
Toronto	-79.61	43.67	638
Washington	-77.44	38.94	715

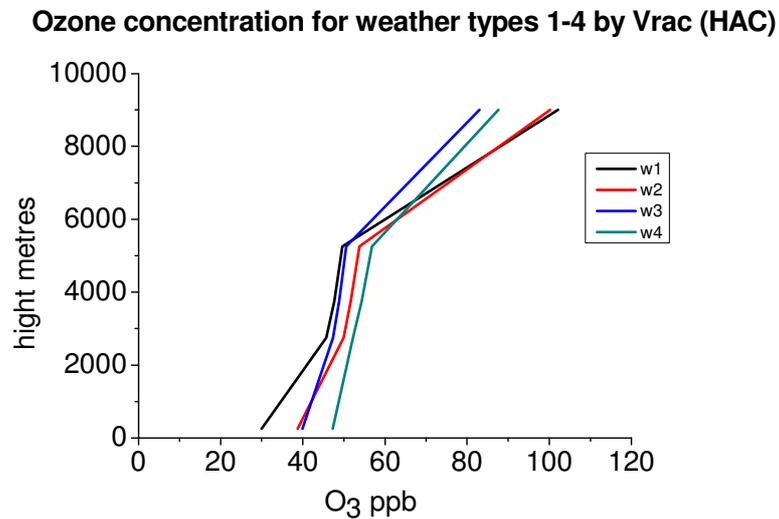
Wetterlagen 1 und 4 sind klar unterscheidbar, Wetterlagen 2 und 3 weniger deutlich. Wetterlage 1 zeigt sowohl bei der spezifischen Feuchte als auch bei Ozon geringe Werte in der unteren Troposphäre. Die Ozonwerte steigen in der oberen Troposphäre stark an. Dies steht in Übereinstimmung mit dem überwiegenden Auftreten der Wetterlage im Winter (s. Abb 5.4). Wetterlage 4 zeigt in der unteren Troposphäre die höchsten Werte für Ozon und spezifische Feuchte. Diese Wetterlage tritt gehäuft im Sommer auf. Die Wetterlagen 2 und 3 sind in der unteren Troposphäre schlecht zu unterscheiden, jedoch treten bei den Ozonprofilen in der oberen Troposphäre Konzentrationsunterschiede auf.

Die Vertikalprofile für die fünf EM-Klassen sind Abb. 5.9 und 5.10 zu entnehmen. Die beiden überwiegend im Sommer auftretenden Wetterlagen 4 und 5 zeigen ähnliche Profile wie Wetterlage 4 der HAC-Klassifikation: hohe Ozon- und Werte der spezifischen Feuchte in der unteren Troposphäre, Rückgang der Ozonwerte in der oberen Troposphäre. Wetterlage 3 tritt vornehmlich im Winter auf und weist durch ähnliche Merkmale wie Wetterlage 1 der HAC-Klassifikation auf.

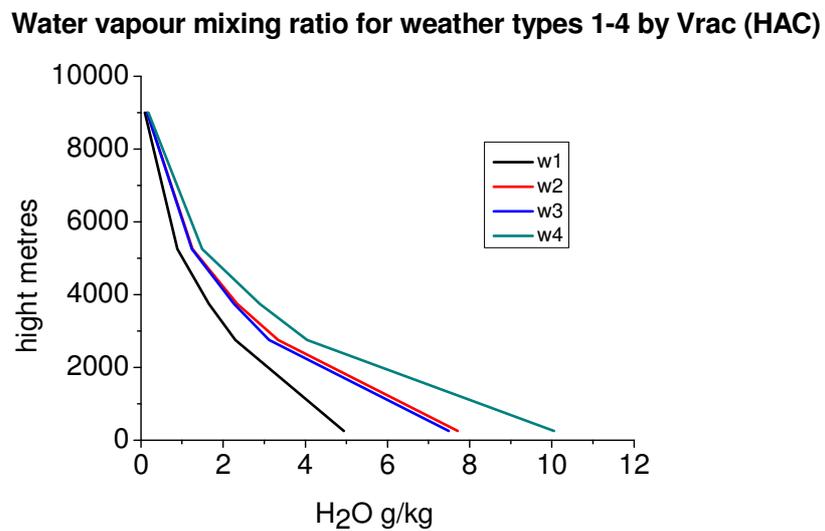
Schließlich zeigen Abbildungen 5.11 und 5.12 die Vertikalprofile der beiden Spurengase aufgeteilt nach der Klassifikation aus Self-organising Maps von 1994 - 1999. Wetterlagen 1, 3 und 5 treten gehäuft im Sommer auf und zeigen bei beiden Spurengasen erhöhte Werte im unteren Bereich der Troposphäre. Die Ozonwerte

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

gehen im Sommer im oberen Bereich zurück. Wetterlage 6 tritt hauptsächlich im Winter auf und zeigt niedrige Werte in beiden Fällen. Für Ozon steigen die Werte in der oberen Troposphäre an.



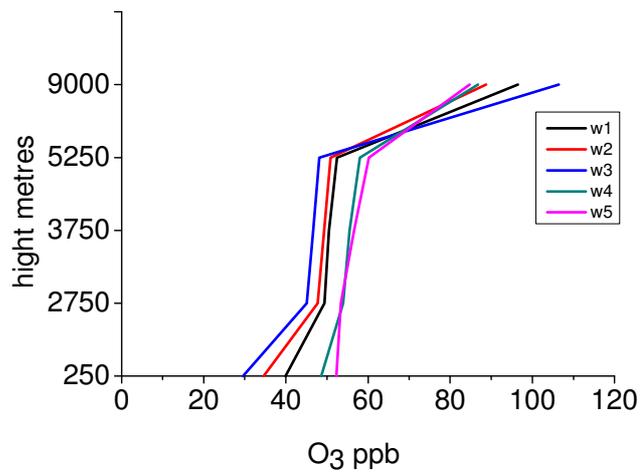
**Abbildung 5.7** Vertikalprofile von Ozon nach HAC



**Abbildung 5.8** Vertikalprofile der spezifischen Feuchte nach HAC

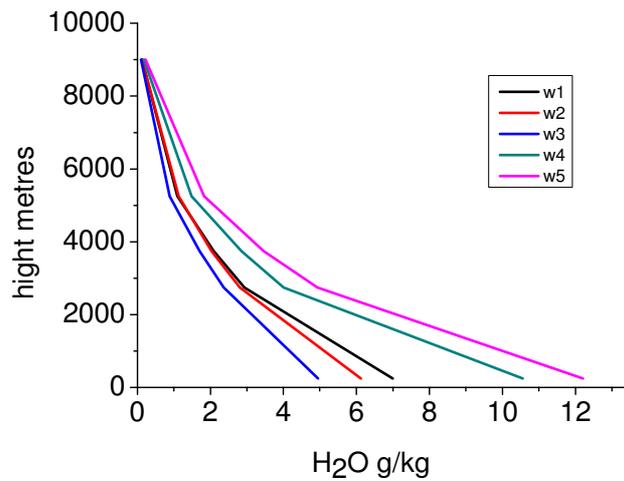
## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

**Ozone concentration for weather types 1-5 by Vrac (EM)**



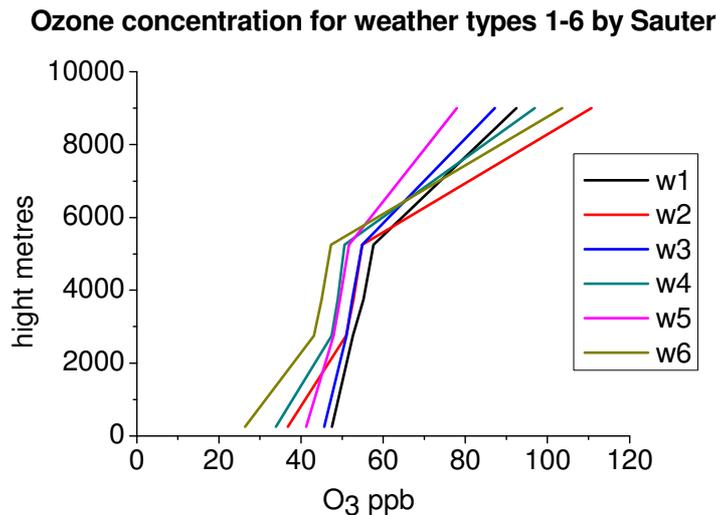
**Abbildung 5.9** Vertikalprofile Ozon EM

**Water vapour mixing ratio for weather types 1-5 by Vrac (EM)**

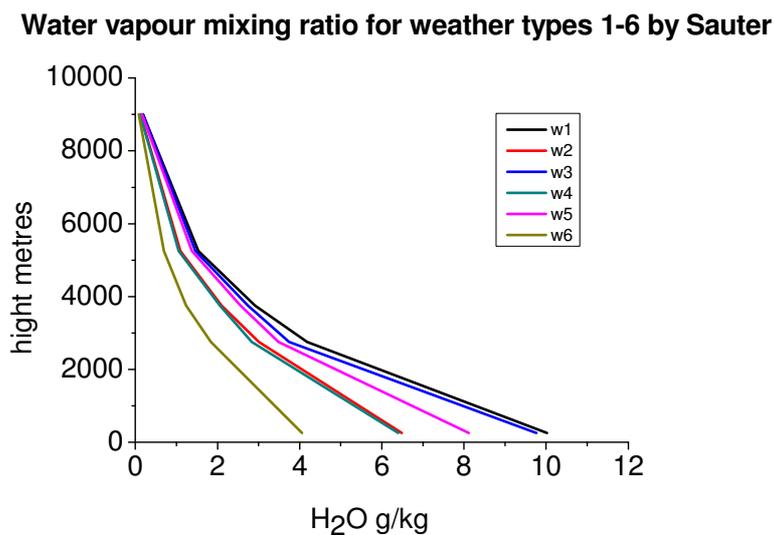


**Abbildung 5.10** Vertikalprofile der spezifischen Feuchte EM

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen



**Abbildung 5.11** Vertikalprofile Ozon nach SOM



**Abbildung 5.12** Vertikalprofile des Wasserdampfmischungsverhältnisses nach SOM

Die Datensätze der drei Klassifikationen wurden auch für den im später folgenden Kapitel 5.4 beschriebenen U-Test verwandt. Der Gesamttraum USA-Ost weist zwar eine höhere Datendichte für die fünf Jahre von 1994 – 1999 auf und macht damit eine statistische Auswertung möglich. Für eine Auswertung des Einflusses der Anströmrichtung an den Flughäfen ist die Aussagekraft allerdings zu gering, da die synoptische Situation dort wie auch die Verteilung der Spurengase differenzierter und spezieller ist. Der Großraum wurde daher für die weitere Untersuchung nicht

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

berücksichtigt. Die Auswertungen zum U-Test für die drei Wetterlagenklassifikationen HAC, EM und SOM für den Zeitraum 1994 – 1999 befinden sich im Anhang (Tab. A2 – A13). Sie zeigen für den Großraum im Fall klar unterscheidbarer Wetterlagen häufig eine Trennung durchgängig in allen Höhengiveaus für alle drei Klassifikationen sowie eine schlechtere Trennung innerhalb von Sommer und Winter für Ozon und das Wasserdampfmischungsverhältnis als innerhalb der Übergangsjahreszeiten (Interpretation siehe Kap. 5.4 ff.). Im hier untersuchten Datensatz wird die häufigste Separierung der Wetterlagen mit der Klassifikation nach dem EM – Ansatz erreicht.

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

### 5.3 TRENNBARKEIT DER SPURENGASKONZENTRATIONEN NACH WETTERLAGEN UND JAHRESZEITEN ANHAND VON HÄUFIGKEITSVERTEILUNGEN

Nach der Selektion der benötigten Datensätze wurde für fünf Höhengniveaus untersucht, inwieweit sich die Verteilungen der Spurengase in den verschiedenen Höhengniveaus zwischen den einzelnen Wetterlagen und Jahreszeiten unterscheiden. Dazu wurden zunächst für jeden Spurenstoff, jedes Höhengniveau, an jedem der vier Flughäfen (in einem 2° Breite mal 2° Länge – Feld um den Flughafen herum) und jeweils nach Wetterlagen und Jahreszeiten getrennt die Häufigkeitsverteilungen aufgetragen.

Die Häufigkeitsverteilungen - in den Kapiteln 5.5 und 5.7 exemplarisch zur Interpretation dargestellt – lassen bei rein visueller Betrachtung keine klare Unterscheidung zu. Um ein genaues Bild von den Unterschieden in den Verteilungen zu erhalten, muss anhand eines statistischen Tests auf signifikanten Unterschied überprüft werden. Der häufig angewandte Student T-Test setzt eine Normalverteilung der Stichproben voraus. Um diese Voraussetzung zu überprüfen, wurde ein Chi-Quadrat-Anpassungstest durchgeführt mit der Prüfgröße

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^k \frac{(BHi - THi)^2}{THi} \quad [43]$$

mit  $k$  = Anzahl der Klassen der Stichprobe,

$BHi$  = beobachtete absolute Häufigkeit der  $i$ -ten Klasse

$THi$  = theoretisch zu erwartende absolute Häufigkeit der  $i$ -ten Klasse, wenn die Hypothese  $H_0$  gilt (Bahrenberg et al. 1999:197).

Das Ergebnis zeigt, dass der überwiegende Anteil der Stichproben nicht normalverteilt ist. In New York, dem Flughafen mit der höchsten Datendichte, für den auch die Auswertung der Spurenstoffverteilung nach einzelnen Wetterlagen in Jahreszeiten gezeigt wird, liegt der Anteil von normalverteilten Stichproben bei Ozon bei 24 von insgesamt 50, beim Wasserdampf-Mischungsverhältnis bei 5 von 50 und bei Kohlenmonoxid bei 43 von 50. Für den Raum USA-Ost, der deckungsgleich mit den für die Wetterlagenklassifikation herangezogenen Koordinaten ist, liegt die Zahl

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

der normalverteilten Stichproben von Ozon bei 18 von 50, beim Wasserdampf-Mischungsverhältnis bei 2 von 48 und bei Kohlenmonoxid bei 35 von 50 (vgl. Tabellen A14 - A17 im Anhang).

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

### 5.4 ANWENDUNG DES U-TESTES NACH MANN/WHITNEY

Aus diesem Grund muss ein verteilungsfreier Test angewandt werden. Es bietet sich der U-Test nach Mann und Whitney (Schönwiese 2000:134) an, bei dem die Daten in Rangordnungen gebracht werden. Allen Daten der beiden zu vergleichenden Stichproben a und b gemeinsamer aufsteigender Wertepaare werden Rangplätze zugeordnet und die Summen  $R_a$  und  $R_b$  auf die jeweilige Stichprobe entfallenden Rangplätze berechnet. Die letztlich ermittelte Testgröße  $z$  wird mit Tabellenwerte für  $z(\alpha)$  bei verschiedenen Signifikanzniveaus verglichen und muss größer sein als  $z(\alpha)$  für einen positiven Testentscheid, der Vermutung eines signifikanten Unterschieds der Stichprobenmediane und der Annahme der Alternativhypothese (Schönwiese 2000:134). Das in dieser Arbeit angenommene Signifikanzniveau liegt bei 95%.

$$U_1 = n_a n_b + \frac{n_a(n_a + 1)}{2} - R_a \quad [44]$$

$$U_2 = n_a n_b + \frac{n_a(n_a + 1)}{2} - R_b \quad [45]$$

$$U = \text{Min}(U_1, U_2) \quad [46]$$

$$z = \frac{\left|U - \frac{n_a n_b}{2}\right|}{\sqrt{\frac{n_a n_b (n_a n_b + 1)}{12}}} \quad [47]$$

mit  $n_a$  und  $n_b$  = Stichprobenumfänge,  $U_1$ ,  $U_2$  sowie  $U$  Hilfsgrößen, benötigt für den letztlich durchzuführenden z-Test.  $z$  muss  $> z_\alpha$  sein für positiven Testentscheid, das  $z_\alpha$  für verschiedene Signifikanzniveaus kann Tabellen entnommen werden.

Mann und Whitney haben den U-Test 1947 für Stichprobenpaare ungleichen Umfangs entwickelt und Tabellen für das Signifikanzmaß  $z$  erstellt. Die ursprüngliche Version von 1945 nach Wilcoxon sah den Test nur für  $m = n$  vor ( $m$  = Umfang Stichprobe A,  $n$  = Umfang Stichprobe B) (Dodge 2008). Enthält eine Stichprobe 10 Werte und die zu vergleichende 100, so beeinflusst dies das Testergebnis ebensowenig, als hätten beide Stichproben die gleiche Anzahl Werte.

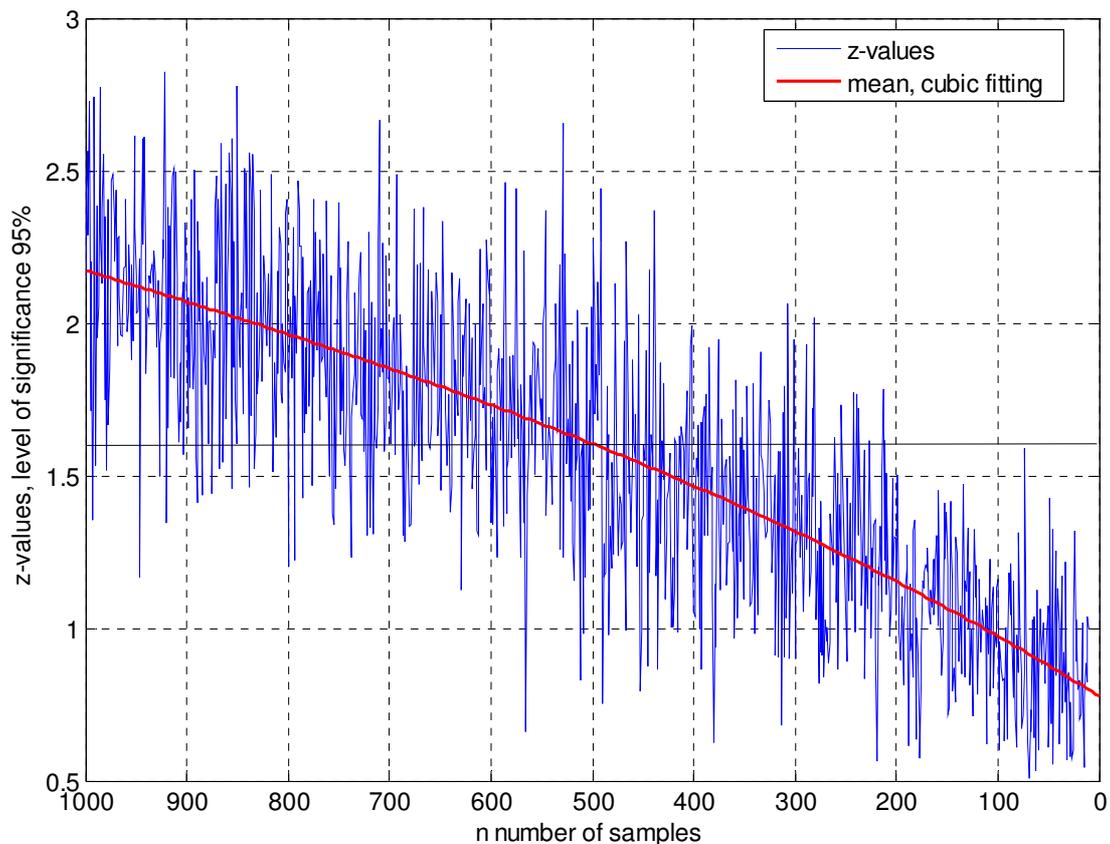
## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

Die einzige limitierende Bedingung ist die Größe der Stichproben. Als Richtwert gilt  $n_a, n_b > 10$ . Die Verteilungen werden bei der Berechnung der z-Werte standardisiert durch

$$z = \frac{U - \mu}{\sigma} \quad [48]$$

Wenn der Stichprobenumfang beider Verteilungen zusammen den Wert 12 überschreitet, nähert sich die Verteilung der Stichprobe  $U$  (der in Rangfolge gebrachten Wertepaare aus Stichprobe  $a$  und  $b$ ) schnell der Normalverteilung an, so dass die  $z$ -Transformation zulässig ist (vgl. Dodge 2008).

Die Anzahl der Stichprobenelemente beeinflusst den Testentscheid. Werden zwei Normalverteilungen mit einer Differenz des Mittelwertes von 0.1 aus Zufallszahlen generiert und der Test auf Wertepaare startend mit jeweils  $n=1000$  bis jeweils  $n=10$  angewandt, so verschiebt sich mit kleiner werdendem  $n$  der  $z$ -Wert. (vgl. Abb 5.13)



**Abbildung 5.13** Abnehmende z-Werte bei kleiner werdendem  $n$ , abnehmend von  $n=1000$  auf  $n=10$ , bei 10 Iterationen

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

Der Schwellenwert 1.645, der bei einem Signifikanzniveau von 95% den positiven Testentscheid markiert, ist durch eine rote Linie im Diagramm gekennzeichnet. Es ist zu erkennen, dass ab  $n < 500$  Stichprobenelementen der Testentscheid nicht mehr signifikant ist. Dies gilt es zu bedenken, da in der vorliegenden Untersuchung die Stichprobenumfänge sehr klein sind, meist zwischen 50 und 100 liegen und in einigen Fällen deutlich unter 50. Somit kann ein negativer Testentscheid im Grenzfall auch die Folge einer zu kleinen Stichprobe sein. Dies ist bei einer Unterteilung der Datensätze in Flughäfen, Wetterlagen, Jahreszeiten und einzelne Höhenniveaus unvermeidbar.

Der Test reagiert sehr empfindlich. Verschiebt man bei zwei normalverteilten Stichproben den Mittelwert der einen Verteilung um einige Nachkommastellen und testet auf einem Signifikanzniveau von 95%, so lautet das Ergebnis: bis zu einem Mittelwert von  $\mu = 0,08$  sind die Verteilungen gleich, ab  $\mu = 0,09$  entscheidet der Test, die Verteilungen sind unterschiedlich. Die Distanz der beiden Mittelwerte hat unmittelbaren Einfluss auf die Höhe des z-Wertes. Beim Test zweier Verteilungen mit  $\mu = 0$  und  $\mu = 0,09$  lautet der z-Wert 2,9. Bei Mittelwerten von  $\mu = 0$  und  $\mu = 5$  liegt der bei 38,71.

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

### 5.5. ERGEBNISSE DES U-TESTS FÜR OZON AUF BASIS DER SOM-WETTERLAGEN

In Tab.5.5 sind die z-Werte für Ozon in New York dargestellt. Es fällt auf, dass die signifikant hohen z-Werte zwischen den Jahreszeiten liegen. Innerhalb der Wetterlagen werden weniger hohe z-Werte erreicht, und dort liegen auch gehäuft die Werte unter 1.645, welche einen negativen Testentscheid bezeichnen. Die Sommerwetterlagen lassen sich weniger deutlich untereinander unterscheiden, ebenso die drei Winterwetterlagen. Die häufig im Sommer auftretenden Wetterlagen 1, 3 und 6 lassen sich gut von den oft im Winter auftretenden Wetterlagen 2, 4 und 5 unterscheiden. Im obersten Niveau in 8000 - 10000 Metern Höhe trennen die Wetterlagen am schlechtesten. Bei den Jahreszeiten lassen sich Frühjahr und Sommer am schlechtesten voneinander trennen, in 2500 - 3000 und 8000 - 10000 Meter gar nicht. Im oberen Stockwerk gibt es ebenfalls keinen Unterschied zwischen Herbst und Winter. In den meisten Fällen ist eine Trennung oder Nichttrennung in allen Höhen konsistent. Wetterlagen 1 und 3 sowie 3 und 6 lassen sich im unteren Niveau nicht trennen.

Untersucht man nun in einem nächsten Schritt die Verteilungen der Spurengase in den Wetterlagen in den jeweiligen Jahreszeiten, so lässt sich die Tendenz, dass „Sommerwetterlagen“ und „Winterwetterlagen“ untereinander schlecht zu trennen sind, näher betrachten. Durch die Unterteilung der Datensätze in Wetterlagen in Jahreszeiten wird der Datensatz weiter reduziert. Die Analyse lässt sich nur für New York durchführen, da hier die Stichproben noch groß genug sind, um statistisch aussagekräftig zu sein. Tab 5.6 und Tab 5.7 enthalten die z-Werte für Ozon nach Wetterlagen nacheinander in den Jahreszeiten Frühjahr, Sommer, Herbst und Winter.

Es fällt auf, dass keine Trennung der Wetterlagen in den Jahreszeiten Sommer und Winter erkennbar ist. In den Übergangsjahreszeiten Frühjahr und Herbst jedoch, in denen alle Wetterlagen gemischt auftreten, sind deutliche Trennung vorhanden. Besonders auffällig sind sie im Frühjahr im untersten Niveau zwischen Wetterlage 2 und 3, und im Herbst in 3000-4500 Metern zwischen Wetterlagen 1 und 3, 1 und 4 und 1 und 5 sowie in 4500 bis 6000 Metern ebenfalls zwischen Wetterlage 1 und 3. Hier ist eine Trennung zwischen zwei Sommerwetterlagen zu erkennen.

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

**Tabelle 5.5** z-Werte für Ozon in New York, alle Höhengiveaus. Weiß:  $z > z_\alpha$ , grau:  $z < z_\alpha$

	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	7.58	8.08	7.70	7.48	1.57
Z (WL1&3)	1.13	1.77	3.86	4.70	4.14
Z (WL1&4)	7.12	8.55	10.29	9.56	4.52
Z (WL1&5)	5.80	6.02	7.23	7.36	2.83
Z (WL1&6)	2.36	0.51	1.15	0.91	0.09
Z (WL2&3)	7.62	6.36	4.18	2.95	1.45
Z (WL2&4)	1.33	0.96	0.67	1.54	1.81
Z (WL2&5)	2.49	2.97	1.55	0.83	0.74
Z (WL2&6)	8.68	7.57	6.47	6.52	1.40
Z (WL3&4)	7.17	6.43	5.85	4.54	0.64
Z (WL3&5)	6.08	4.08	3.13	2.40	0.83
Z (WL3&6)	0.91	1.29	2.69	3.85	4.15
Z (WL4&5)	1.45	2.43	2.61	2.46	1.31
Z (WL4&6)	8.19	7.85	8.70	8.50	4.40
Z (WL5&6)	7.13	5.45	5.89	6.31	2.71
Z (Spring&Summer)	6.34	0.62	1.74	2.87	0.57
Z (Spring&Fall)	11.84	14.74	16.69	15.86	10.38
Z (Spring&Winter)	17.31	18.58	19.29	18.05	8.68
Z (Summer&Fall)	15.19	14.25	16.92	17.24	11.77
Z (Summer&Winter)	18.81	17.56	19.01	18.70	9.04
Z (Fall&Winter)	7.10	5.47	4.82	3.57	0.98

5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

**Tabelle 5.6** z-Werte Ozon New York alle Wetterlagen in Frühjahr und Sommer. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

<b>o3</b>					
<b>Spring</b>	<b>500</b>	<b>2500-3000</b>	<b>3000-4500</b>	<b>4500-6000</b>	<b>8000-10000</b>
Z (WL1&2)	3.02	3.37	1.80	2.16	1.34
Z (WL1&3)	3.48	0.49	0.87	1.14	0.76
Z (WL1&4)	0.76	2.50	3.18	1.65	2.25
Z (WL1&5)	0.89	1.46	1.67	3.48	0.75
Z (WL1&6)	1.20	0.48	0.09	1.14	0.13
Z (WL2&3)	4.40	3.01	0.77	0.96	1.63
Z (WL2&4)	1.03	0.37	1.46	0.60	0.65
Z (WL2&5)	2.06	0.37	0.45	0.27	1.64
Z (WL2&6)	3.10	3.48	1.61	1.47	1.26
Z (WL3&4)	2.30	2.55	2.47	1.07	2.48
Z (WL3&5)	3.23	1.77	0.56	1.51	0.03
Z (WL3&6)	1.95	0.04	0.74	0.37	0.42
Z (WL4&5)	0.16	1.80	2.28	0.43	2.11
Z (WL4&6)	0.98	2.52	3.24	1.58	1.84
Z (WL5&6)	1.56	1.82	1.55	2.12	0.54
<b>Summer</b>	<b>500</b>	<b>2500-3000</b>	<b>3000-4500</b>	<b>4500-6000</b>	<b>8000-10000</b>
Z (WL1&2)	1.62	1.24	1.50	1.24	0.50
Z (WL1&3)	2.64	1.64	1.52	0.50	1.63
Z (WL1&4)	2.40	1.34	0.82	0.42	1.68
Z (WL1&5)	0.05	0.21	0.38	0.93	0.93
Z (WL1&6)	2.23	1.22	1.44	0.93	0.20
Z (WL2&3)	0.02	0.48	0.80	1.07	0.61
Z (WL2&4)	0.23	0.39	0.92	0.80	0.96
Z (WL2&5)	1.27	0.71	0.94	0.40	0.18
Z (WL2&6)	0.33	0.79	0.99	0.89	0.54
Z (WL3&4)	0.49	0.18	0.09	0.09	0.62
Z (WL3&5)	1.42	0.63	0.48	0.75	0.19
Z (WL3&6)	0.65	0.68	0.17	0.55	2.43
Z (WL4&5)	1.69	0.73	0.56	0.58	1.01
Z (WL4&6)	0.80	0.63	0.05	0.21	2.06
Z (WL5&6)	1.14	0.40	0.46	0.57	1.04

5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

**Tabelle 5.7** -Werte Ozon New York alle Wetterlagen in Herbst und Winter. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

<b>Fall</b>	<b>500</b>	<b>2500-3000</b>	<b>3000-4500</b>	<b>4500-6000</b>	<b>8000-10000</b>
Z (WL1&2)	0.86	3.12	3.65	3.21	0.42
Z (WL1&3)	1.57	1.11	4.51	4.52	3.04
Z (WL1&4)	1.05	3.14	4.23	3.95	0.22
Z (WL1&5)	0.28	1.81	4.10	3.28	0.52
Z (WL1&6)	2.15	1.27	3.35	2.03	0.68
Z (WL2&3)	2.89	2.68	0.32	0.35	2.03
Z (WL2&4)	0.10	0.58	0.45	0.04	0.80
Z (WL2&5)	0.76	1.56	0.54	0.16	0.02
Z (WL2&6)	3.32	2.19	1.13	1.46	0.02
Z (WL3&4)	3.26	2.38	0.29	0.47	3.32
Z (WL3&5)	2.10	1.03	0.26	0.45	2.02
Z (WL3&6)	0.86	0.31	1.23	2.45	2.78
Z (WL4&5)	0.74	1.04	0.50	0.03	0.76
Z (WL4&6)	3.89	1.88	0.80	1.74	0.84
Z (WL5&6)	2.72	0.61	0.93	1.56	0.01
<b>winter</b>	<b>500</b>	<b>2500-3000</b>	<b>3000-4500</b>	<b>4500-6000</b>	<b>8000-10000</b>
Z (WL1&2)	1.94	1.38	1.51	0.81	0.60
Z (WL1&3)	0.06	0.15	0.68	1.73	2.35
Z (WL1&4)	0.33	0.17	0.95	0.68	0.80
Z (WL1&5)	0.89	0.43	1.08	1.01	0.17
Z (WL1&6)	0.79	0.18	0.42	0.37	0.03
Z (WL2&3)	2.22	1.86	0.95	1.79	3.42
Z (WL2&4)	2.54	2.65	1.29	0.02	1.81
Z (WL2&5)	1.55	1.67	0.68	0.31	1.13
Z (WL2&6)	1.41	1.67	1.15	0.23	0.86
Z (WL3&4)	0.47	0.13	0.06	1.94	2.32
Z (WL3&5)	0.96	0.52	0.49	1.59	2.76
Z (WL3&6)	0.96	0.25	0.26	1.51	2.24
Z (WL4&5)	0.78	0.94	0.50	0.32	0.72
Z (WL4&6)	0.87	0.47	0.30	0.13	0.77
Z (WL5&6)	0.21	0.22	0.72	0.42	0.01

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

Die Ozonverteilungen in den Wetterlagen bilden die Jahreszeiten ab. Wie Abb 5.1 zu entnehmen ist, handelt es sich bei den Sommerwetterlagen um ein Zirkulationsmuster mit den steuernden Hochdruckzellen über dem westlichen Atlantik. Bei Wetterlage 1, welche schwerpunktmäßig im Frühsommer auftritt, liegt das Bermudahoch östlich von Florida über dem Atlantik, während es bei Wetterlagen 6 und 3 im Hochsommer bis Frühherbst weiter nach Norden bis vor die Küsten der Carolinas bzw. im Spätsommer bis zu den Mid-Atlantic-Staaten vorgelagert ist. Das korrespondierende Tiefdruckgebiet liegt jeweils im Bereich über der Hudson-Bay und verlagert sich ebenfalls nordwärts im Verlauf des Sommers. Diese Druckkonstellation erzeugt eine stabile Schichtung über der Ostküste der USA. Besonders auffällig ist die unmittelbare Lage des Hochdruckkerns über der Küstenregion bei Wetterlage 3. Unter den stabilen Bedingungen ist die photochemische Ozonproduktion begünstigt. Besonders in den unteren 500 Metern ist bei den Sommerwetterlagen keine Trennung möglich. Wetterlage 1 ist die am stärksten abweichende Wetterlage, da hier das Hochdruckgebiet noch weit im Südosten liegt. Bei einer Betrachtung der Wetterlagen in den Jahreszeiten lässt sich die Wetterlage 1 von den Wetterlagen 3 und 6 im Bodenniveau trennen. Die Küste liegt unter direktem Einfluss permanenter Westwinde an der Nordflanke des Hochdruckgebietes, zum Teil noch unter Einfluss von Tiefdruckausläufern aus dem Südwesten und Nordosten, so dass ständige Durchmischung stattfindet. Im Bereich der Hochdruckzellen bei Wetterlage 3 und 6 unterliegen die Flughäfen an der Ostküste Nordamerikas einer ständigen West/Südwest-Strömung. Dies hat – die Lage des Flughafens mit in Betracht gezogen – zur Folge, dass in Atlanta, wo der Flughafen südlich der Stadt liegt, hohe Ozonkonzentrationen gemessen werden. Hier kann auf dem Transport der Luftmassen von der industriereichen Golfregion geschlossen werden, wo petrochemische Produktion in großem Umfang angesiedelt ist und unter begünstigten Einstrahlungsbedingungen photochemisches Ozon gebildet wird. Die höchsten Ozonkonzentrationen treten bei Wetterlage 6 auf, sowohl unterhalb der Grenzschicht als auch in der mittleren Troposphäre (s. Abb. 5.14 und Abb. 5.15).

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

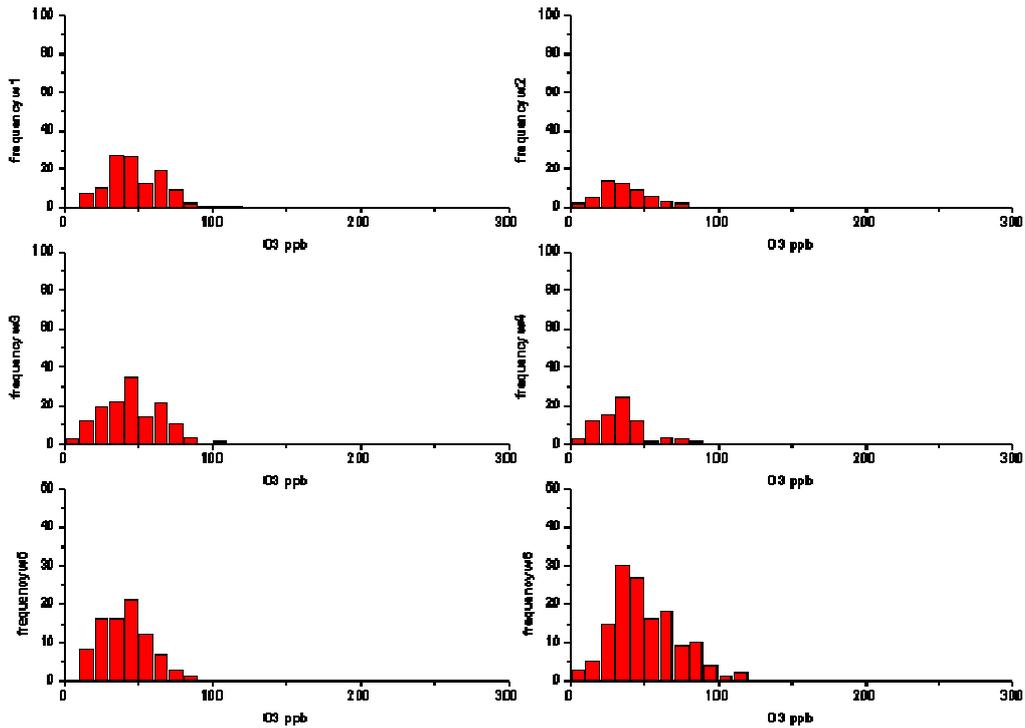


Abbildung 5.14 Ozonverteilung nach Wetterlagen Atlanta 0 - 500m über Grund

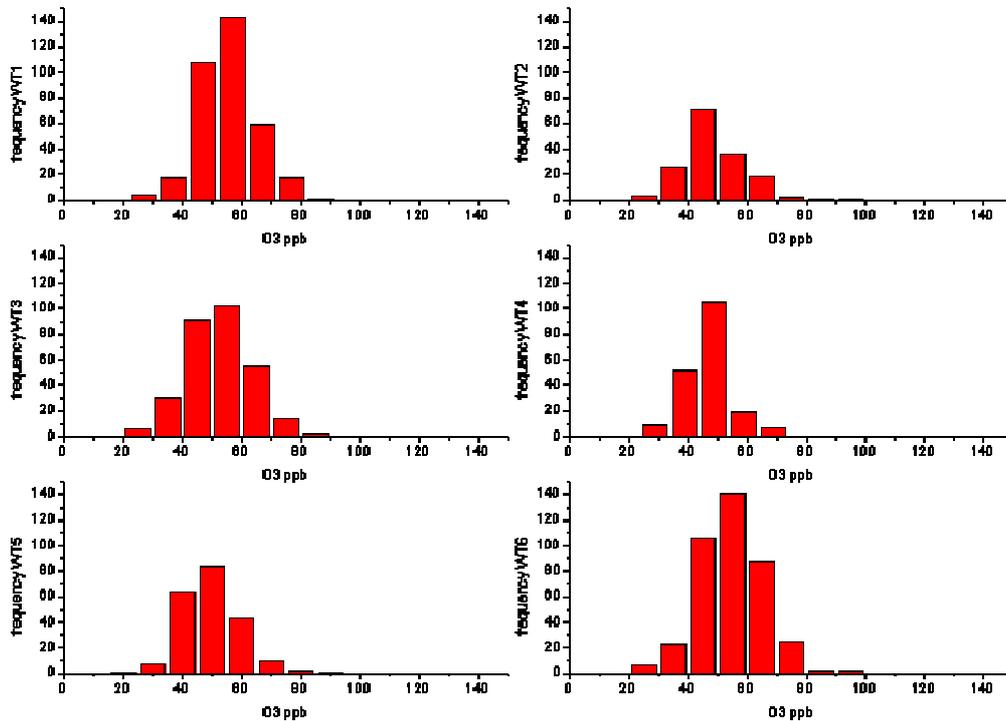


Abbildung 5.15 Ozonverteilung nach Wetterlagen New York 3000 - 4500m über Grund

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

Bei Wetterlage 6 liegen die Flughäfen am Rand eines großen Tiefdruckgebietes mit Kern über der Hudson-Bay (vgl. Abb. 5.1). An der Südflanke des Tiefdruckgebietes mit Kern über der Hudson-Bay wird stratosphärische Luft mit hohen Ozonkonzentrationen in die freie Troposphäre eingetragen, wodurch die hohen Ozonwerte in der freien Troposphäre an den Flughäfen erreicht werden (Thompson et al. 2007). Für die Sommer 2004 - 2007 fanden Yorks et al. (2009) in Ozonprofilen über dem Osten der USA (Beltsville, Maryland), dass durchschnittlich 30 Prozent der Ozonsäule in der freien Troposphäre auf stratosphärisch-troposphärische Austauschprozesse zurückzuführen sind. Dies entspricht im betrachteten Zeitraum dem Doppelten dessen, was auf regionale Konvektionsprozesse und Blitzentladungen zurück-zuführen ist (Yorks et al. 2009).

Zudem werden bei Wetterlage 6 an der Westflanke der atlantischen Antizyklone Luftmassen zunächst über die südliche Karibik und den Golf von Mexiko geführt und labilisiert, bevor sie mit tropischem Charakter südöstlichen Kontinent erreichen (Weischet 1996:154) und dort an der Luftmassengrenze zwischen feuchtwarmer Luft vom Golf von Mexiko und etwas kühlerer trockenerer Luft am Nordwestrand des Bermudahochs über dem Südosten der USA eine Voraussetzung für starke Konvektion und die intensiven Sommergewitter bilden. Das bei Gewittern produzierte  $\text{NO}_x$  hat im Südosten der USA einen großen Einfluss auf die Ozonkonzentration in der oberen Troposphäre. Parrington et al. (2007) schließen aus Modellrechnungen auf einen signifikanten Rückgang der Ozonkonzentrationen, wenn das blitzgenerierte  $\text{NO}_x$  im Modell nicht miteinfließt (Parrington et al. 2007).

In Boston und New York liegen die Flughäfen in der Abwindzone der Stadt, so dass durch die hohe Belastung an Kohlenmonoxiden und Stickoxiden an den Flughäfen niedrigere Ozonkonzentrationen gemessen werden. Dies bestätigt die Ergebnisse in Kapitel 4. Die Winterwetterlagen sind gekennzeichnet durch ein stark ausgeprägtes Hoch über dem Festland. Die Lage des Kerndruckes variiert zwischen dem Mittleren Westen westlich der Großen Seen bei Wetterlage 2, einer leichten Südverlagerung mit Kern südwestlich der Großen Seen bei Wetterlage 4, sowie einer Nordverlagerung mit Kern zwischen den Großen Seen und der Hudson Bay. Das bedeutet für die Flughäfen eine Anströmrichtung aus Nord bei Wetterlage 2, aus Nordwest bei Wetterlage 4 und eine Ostanströmung vom Atlantik her bei Wetterlage 5. Alle Anströmrichtungen bringen Reinluft bei ungenügenden Einstrahlungs-

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

bedingungen im Winter zu den Flughäfen. Damit sind weder Ozonvorläufer-substanzen noch die Voraussetzung für photochemische Prozesse vorhanden. Die Ozonkonzentrationen sind gering.

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

### 5.6 ERGEBNIS DES U-TESTS FÜR DAS WASSERDAMPF-MISCHUNGSVERHÄLTNIS

Die z-Werte des U-Tests für Wasserdampf-Mischungsverhältnisse in Wetterlagen und Jahreszeiten in New York sind in Tab 5.8 dargestellt.

**Tabelle 5.8** z-Werte Wasserdampf-Mischungsverhältnis New York Wetterlagen und Jahreszeiten.  
Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

h2o	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	7.04	4.90	4.92	4.57	5.50
Z (WL1&3)	0.63	1.71	1.02	0.41	1.21
Z (WL1&4)	8.59	7.38	6.69	6.21	5.82
Z (WL1&5)	8.76	6.22	5.00	4.03	5.48
Z (WL1&6)	5.29	1.46	1.52	1.33	0.44
Z (WL2&3)	7.07	3.40	4.19	4.25	6.47
Z (WL2&4)	1.32	2.14	0.98	1.23	0.14
Z (WL2&5)	1.17	1.16	0.11	0.39	0.47
Z (WL2&6)	10.24	6.22	6.03	5.57	5.34
Z (WL3&4)	8.50	5.91	5.80	5.69	6.81
Z (WL3&5)	8.69	4.69	4.10	3.62	6.54
Z (WL3&6)	4.31	3.21	2.55	1.73	1.72
Z (WL4&5)	0.10	1.04	1.27	1.73	0.14
Z (WL4&6)	11.77	8.55	7.93	7.16	5.69
Z (WL5&6)	12.20	7.57	6.27	5.13	5.28
Z (Spring&Summer)	19.12	10.14	8.40	7.57	9.80
Z (Spring&Fall)	5.85	0.05	1.25	2.12	2.82
Z (Spring&Winter)	11.94	8.23	6.07	4.95	3.46
Z (Summer&Fall)	15.28	9.65	7.36	5.36	7.90
Z (Summer&Winter)	21.86	15.84	13.20	12.04	13.30
Z (Fall&Winter)	16.13	7.95	7.32	7.06	6.62

Auch in diesem Fall trennen die Jahreszeiten besser als die Wetterlagen die Verteilungen voneinander. Ganz deutlich tritt hervor, dass die Wetterlagen 1, 3 und 6 sowie die Wetterlagen 2, 4 und 5 konsistent vom unteren bis in den oberen Bereich der Atmosphäre keine Unterschiede zeigen. Ebenso die beiden Übergangsjahreszeiten Frühjahr und Herbst trennen am schlechtesten von allen Jahreszeiten und in 2500 bis 4500 Meter gar nicht.

Betrachtet man auch hier wieder die Wetterlagen in den Jahreszeiten in Tab 5.9 und Tab. 5.10, so zeigt sich ein ähnliches Bild wie bei den Ozonverteilungen. Sommer und Herbst trennen kaum, Frühjahr und Herbst jedoch deutlich, besonders in den

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

unteren Niveaus und nach niedrigeren z-Werten nach oben wieder zunehmend. Wetterlagen 1 und 5 und 5 und 6 im Frühjahr belegen dies, sowie Wetterlagen 1 und 4, 1 und 5, 2 und 6, 4 und 6 sowie 5 und 6. Im Winter fällt die deutliche Trennung zwischen Wetterlagen 4 und 6 auf.

**Tabelle 5.9** z-Werte Wasserdampf-Mischungsverhältnis alle Wetterlagen in Frühjahr und Sommer. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

h2o					
<b>Spring</b>	<b>500</b>	<b>2500-3000</b>	<b>3000-4500</b>	<b>4500-6000</b>	<b>8000-10000</b>
Z (WL1&2)	2.68	0.74	1.05	1.65	1.88
Z (WL1&3)	0.20	0.05	0.59	1.75	0.98
Z (WL1&4)	2.36	2.93	2.44	2.57	2.49
Z (WL1&5)	3.11	3.20	2.56	1.96	2.28
Z (WL1&6)	0.98	0.32	0.51	1.33	1.31
Z (WL2&3)	1.95	0.61	0.57	0.22	1.00
Z (WL2&4)	1.15	2.15	1.51	1.70	1.00
Z (WL2&5)	0.30	1.51	0.97	0.01	0.15
Z (WL2&6)	2.80	0.82	0.62	0.49	0.90
Z (WL3&4)	2.03	2.42	1.93	1.80	1.98
Z (WL3&5)	2.25	2.24	1.59	0.05	1.12
Z (WL3&6)	0.84	0.32	0.09	0.58	0.23
Z (WL4&5)	0.80	0.91	0.84	1.72	1.35
Z (WL4&6)	2.50	2.96	2.11	2.02	1.98
Z (WL5&6)	3.37	2.97	1.85	0.66	1.03
<b>Summer</b>	<b>500</b>	<b>2500-3000</b>	<b>3000-4500</b>	<b>4500-6000</b>	<b>8000-10000</b>
Z (WL1&2)	0.56	0.02	0.78	0.24	0.67
Z (WL1&3)	0.07	1.62	1.66	0.85	1.64
Z (WL1&4)	0.70	1.11	1.71	0.90	0.31
Z (WL1&5)	0.46	0.01	0.52	1.31	0.30
Z (WL1&6)	0.70	1.33	0.66	0.08	0.20
Z (WL2&3)	0.59	0.88	0.09	0.19	1.55
Z (WL2&4)	1.04	0.50	0.40	0.43	0.81
Z (WL2&5)	1.13	0.16	0.93	0.89	0.99
Z (WL2&6)	0.34	0.53	0.36	0.30	0.45
Z (WL3&4)	0.99	0.12	0.83	0.38	0.87
Z (WL3&5)	0.57	1.00	1.67	1.86	0.65
Z (WL3&6)	0.76	0.66	1.44	1.11	2.12
Z (WL4&5)	0.31	0.78	1.76	1.85	0.12
Z (WL4&6)	1.36	0.38	1.48	1.06	0.43
Z (WL5&6)	1.05	0.58	0.98	1.46	0.65

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

**Tabelle 5.10** z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis alle Wetterlagen Herbst und Winter.  
Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

Fall	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	3.60	1.42	1.56	0.61	2.29
Z (WL1&3)	2.99	1.63	0.48	0.30	0.06
Z (WL1&4)	4.42	2.00	1.96	2.31	2.78
Z (WL1&5)	5.03	1.80	1.98	2.29	3.04
Z (WL1&6)	1.57	0.74	0.64	1.06	1.51
Z (WL2&3)	1.60	0.42	1.32	0.78	2.65
Z (WL2&4)	0.38	0.01	0.03	1.42	0.32
Z (WL2&5)	1.20	0.38	0.44	1.45	0.56
Z (WL2&6)	5.04	2.32	1.89	1.35	1.40
Z (WL3&4)	2.11	0.71	1.68	2.73	3.11
Z (WL3&5)	3.04	0.54	1.72	2.56	3.30
Z (WL3&6)	4.83	2.75	1.19	0.82	1.68
Z (WL4&5)	1.00	0.07	0.40	0.21	0.53
Z (WL4&6)	5.94	2.79	2.55	3.23	1.88
Z (WL5&6)	6.35	2.75	2.68	3.19	2.07
winter	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	1.66	1.47	1.78	1.95	2.91
Z (WL1&3)	0.68	0.91	0.33	0.35	0.87
Z (WL1&4)	2.86	2.65	0.33	1.95	2.53
Z (WL1&5)	2.43	1.97	1.32	1.00	2.20
Z (WL1&6)	0.51	0.37	0.41	0.26	0.86
Z (WL2&3)	1.29	0.59	1.60	2.64	2.48
Z (WL2&4)	1.24	2.42	0.62	0.09	0.57
Z (WL2&5)	0.96	0.96	0.53	1.15	0.75
Z (WL2&6)	2.40	1.69	2.40	2.28	2.31
Z (WL3&4)	2.63	2.58	2.20	2.50	2.22
Z (WL3&5)	2.04	1.56	0.96	1.36	1.71
Z (WL3&6)	1.45	0.87	0.99	0.02	0.17
Z (WL4&5)	0.07	1.26	1.24	1.19	0.27
Z (WL4&6)	4.16	3.50	3.37	2.38	2.00
Z (WL5&6)	3.38	2.11	1.66	0.89	1.49

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

Das Wasserdampfmischungsverhältnis ist deutlich verschieden zwischen Sommer und Winter und zwischen den typischen „Sommer“- und den typischen „Winterwetterlagen“. Zwischen Herbst und Frühjahr erkennt der U-Test keinen signifikanten Unterschied in den Wassermischungsverhältnissen, auch nicht innerhalb der typischen Sommer- und Winterwetterlagen (Abb. 5.6). Da der Wasserdampfgehalt der Atmosphäre von der Temperatur bestimmt ist, ist es von Interesse, die Stärke des Signifikanzmaßes  $z$  in Zusammenhang mit den Temperaturmittelwerten zu betrachten. Dazu wurden die  $z$ -Werte der Wetterlagen- und Jahreszeitenpaare gegen die Differenz der Temperaturmittelwerte in K des jeweiligen Wertepaares aufgetragen. Die Bestimmtheitsmaße sind Tabelle 5.11 zu entnehmen. Wetterlagen und Jahreszeiten wurden getrennt betrachtet. In allen Fällen wurde ein statistischer Zusammenhang gefunden. In den unteren 500 Metern der Atmosphäre sowie im Bereich der Tropopausenregion ist der Zusammenhang am stärksten, im oberen Bereich zwischen den Jahreszeiten und im unteren Bereich zwischen den Wetterlagen.

**Tabelle 5.11** Bestimmtheitsmaß  $z$ -Werte  $H_2O$  gegen Differenz Temperaturmittelwerte

R <sup>2</sup> dT gegen zH <sub>2</sub> O					
New York	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
WL	0.95	0.71	0.8	0.82	0.76
JZ	0.82	0.68	0.8	0.91	0.93
Atlanta					
WL	0.82	0.77	0.72	0.61	0.84
JZ	0.73	0.46	0.35	0.37	0.74
Boston					
WL	0.58	0.37	0.54	0.59	0.81
JZ	0.84	0.43	0.54	0.9	0.93
Washington					
WL		0.36	0.36	0.34	0.34
JZ		0.7	0.7	0.83	0.78

Die gleiche Analyse wurde für die Wetterlagen in den Jahreszeiten gemacht, ebenfalls beschränkt auf New York. In Tabelle 5.12 wird deutlich, dass im Herbst der größte Zusammenhang zwischen Temperaturdifferenz und unterschiedlichen Wasserdampfverteilungen vorherrscht, gefolgt vom Frühjahr, und im Winter bzw. im Sommer werden mit kleiner werdenden  $z$ -Werten auch die Temperaturdifferenzen

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

geringer. Die Qualität der MOZAIC-Daten für Wasserdampf und Temperatur wurde in einem Vergleich mit Satellitendaten aus CHAMP und mit ECMWF-Daten bewiesen. Im Bereich der freien Troposphäre (650-300 hPa) ist die Übereinstimmung mit den Satellitendaten sehr gut. Oberhalb 300 hPa ist die Übereinstimmung zwischen MOZAIC und ECMWF nahezu perfekt (Heise et al. 2008).

**Tabelle 5.12** Bestimmtheitsmaß z-Werte gegen Differenz Temperaturmittelwerte der Wetterlagen in den einzelnen Jahreszeiten

R <sup>2</sup> dT gegen zH <sub>2</sub> O WL in JZ					
New York	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
spring	0.49	0.4	0.36	0.31	0.31
summer	0.026	0.1	0.03	0.05	0.13
fall	0.89	0.33	0.94	0.54	0.34
winter	0.56	0.02	0.02	0.43	0.04

Das Wasserdampfmischungsverhältnis ist in hohem Maß von der Jahreszeit, genauer der solaren Einstrahlung und damit der Temperatur abhängig. Das zeigt sowohl die schlechte Trennung der Jahreszeiten Frühjahr und Herbst sowie aller „Sommerwetterlagen“ untereinander und der „Winterwetterlagen“ untereinander. Die Trennung zwischen Sommer und Winter und den beiden Wetterlagengruppen ist sehr deutlich. Der Zusammenhang zwischen z-Werten und Temperaturdifferenz ist in New York am höchsten. Weiterhin ist er in den unteren und oberen Niveaus stärker. In den unteren Atmosphärenschichten, wo Konvektion stattfindet, steht der Wasserdampfgehalt der Luft in unmittelbarem Zusammenhang mit der Temperatur. In der freien Troposphäre mischen sich Luftschichten verschiedenen Alters und verschiedener Herkunft und Prozesse. So können durch adiabatische Erwärmung absinkende trockene Luftmassen ähnlich hohe Temperaturen aufweisen wie gealterte, tropisch-feuchte Luftmassen. In der Tropopausenregion sind die Luftmassen dagegen sehr trocken und kalt. Nur durch starke Konvektion feuchtwarmer Luftmassen kann feuchtwarme Luft in die Tropopause gelangen. Damit ist der Zusammenhang von Temperatur und Trennbarkeit der Luftmassen in der oberen Troposphäre zu erklären. Bei Betrachtung der Wetterlagen in Jahreszeiten und darin deren Trennbarkeit im Zusammenhang mit der Temperaturdifferenz, so wird in den Übergangsjahreszeiten Frühjahr und ganz besonders Herbst, die nicht

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

von extremen Temperaturunterschieden wie Sommer und Winter beeinflusst sind, deutlich, welchen Einfluss die Wetterlagen auf Temperatur und Spurengasverteilungen in den Jahreszeiten haben. Besonders in den unteren 500 Metern ist die Trennung am besten. Tabelle 5.13 enthält die Temperaturmittelwerte für New York in 0-500 Metern. Wetterlage 6 führt in allen Jahreszeiten zu den höchsten Temperaturen, gefolgt von Wetterlage 1 und 3. Bemerkenswert ist, dass Wetterlage 3 im Frühjahr einen höheren Temperaturmittelwert hat als Wetterlage 1, obwohl letztere öfter vorkommt. Allerdings ist das ausschlaggebende Bermudahoch im Frühjahr noch zu weit südöstlich über dem Atlantik gelegen, um hohe Temperaturen zu erzeugen. Durch den nördlichen Vorstoß des Hochdruckgebietes wird allerdings das stationäre Winter-Kältehoch über dem Festland weiter nach Norden verdrängt, so dass wärmere Luftmassen aus der Golfregion und dem Westatlantik nachströmen können.

**Tabelle 5.13** Temperaturmittelwerte der Wetterlagen in New York 0 - 500 Meter

Wetterlage	Temp K
Spring WL1: mean	284.67
Spring WL2: mean	282.26
Spring WL3: mean	285.39
Spring WL4: mean	278.10
Spring WL5: mean	279.74
Spring WL6: mean	286.41
Summer WL1: mean	295.48
Summer WL2: mean	295.30
Summer WL3: mean	295.45
Summer WL4: mean	297.21
Summer WL5: mean	294.36
Summer WL6: mean	296.59
Fall WL1: mean	289.89
Fall WL2: mean	284.62
Fall WL3: mean	286.84
Fall WL4: mean	283.35
Fall WL5: mean	282.67
Fall WL6: mean	290.92
Winter WL1: mean	276.90
Winter WL2: mean	274.21
Winter WL3: mean	276.50
Winter WL4: mean	273.53
Winter WL5: mean	271.81
Winter WL6: mean	277.30

5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

5.7 ERGEBNIS DES U-TESTS FÜR KOHLENMONOXID

Die z-Werte der Verteilungsprüfung der Kohlenmonoxidkonzentrationen für New York enthält Tab. 5.14. Die Kohlenmonoxidverteilungen werden am schlechtesten von allen Spurengasen getrennt. Zwar ist zwischen Jahreszeiten erneut eine bessere Trennung möglich als zwischen den Wetterlagen, aber auch hier sind die z-Werte auffällig niedrig. Zwischen Frühjahr und Herbst und zwischen Herbst und Winter wird in der untersten bzw. obersten Schicht nicht getrennt. Zwischen den Wetterlagen wird außer in den mittleren Höhengniveaus gar nicht getrennt, die unterschiedlichen Verteilungen liegen sowohl zwischen „Sommer- und Winterwetterlagen“ als auch innerhalb der „Sommer- und Winterwetterlagen“.

**Tabelle 5.14** z-Werte Kohlenmonoxid New York. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

Co	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	1.40	0.82	0.32	0.40	0.35
Z (WL1&3)	0.25	1.92	2.05	1.29	0.20
Z (WL1&4)	1.01	2.15	1.26	0.97	1.30
Z (WL1&5)	1.29	0.36	0.02	0.27	1.29
Z (WL1&6)	0.34	2.16	2.26	1.23	0.46
Z (WL2&3)	0.99	1.18	1.72	1.84	0.10
Z (WL2&4)	0.34	1.53	1.21	1.37	1.01
Z (WL2&5)	0.07	0.26	0.08	0.45	1.58
Z (WL2&6)	1.08	1.28	1.97	2.06	0.15
Z (WL3&4)	0.72	0.20	0.84	0.55	1.10
Z (WL3&5)	0.82	1.54	1.99	1.07	1.59
Z (WL3&6)	0.15	0.19	0.08	0.29	0.17
Z (WL4&5)	0.02	1.95	1.24	0.80	2.43
Z (WL4&6)	0.79	0.17	0.74	0.41	1.05
Z (WL5&6)	1.10	1.89	2.16	1.38	1.89
Z (Spring&Summer)	1.89	5.67	6.06	5.83	3.15
Z (Spring&Fall)	0.58	7.88	8.49	8.88	5.11
Z (Spring&Winter)	2.05	4.85	4.69	5.24	3.61
Z (Summer&Fall)	2.44	1.93	1.74	2.35	3.70
Z (Summer&Winter)	3.94	2.49	3.55	2.57	1.97
Z (Fall&Winter)	1.24	4.79	5.84	5.48	0.55

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

Auch die Wetterlagen innerhalb der einzelnen Jahreszeiten trennen die Verteilungen nicht besser voneinander, mit Ausnahme von Wetterlagen 1 und 5 im Winter in 3000 bis 4500 Metern Höhe werden keine nennenswert signifikanten z-Werte erreicht.

Die in Kapitel 5.4 gezeigte Abhängigkeit der z-Werte in Abhängigkeit des Stichprobenumfangs tritt hier zutage. Die Anzahl der Messwerte pro Wetterlage in den einzelnen Höhengniveaus liegt selbst in New York, dem Flughafen mit der höchsten Datendichte der vier untersuchten Flughäfen, liegt pro Wetterlage unter 50. Bei der Unterteilung in die vier Jahreszeiten fallen mehr Werte auf eine Klasse. Da die z-Werte auch bei dieser Einteilung nicht sehr hoch sind, liegt die Vermutung nahe, dass die ein Grund für die schlechte Trennung in der geringen Stichprobengröße liegt.

Die Häufigkeitsverteilungen der Kohlenmonoxidkonzentration nach Jahreszeit in den unteren 500 Metern über Grund - hier am Beispiel von New York in Abb. 5.16 – zeigen ein Herbst- und Wintermaximum. Im Sommer sind die Werte niedriger.

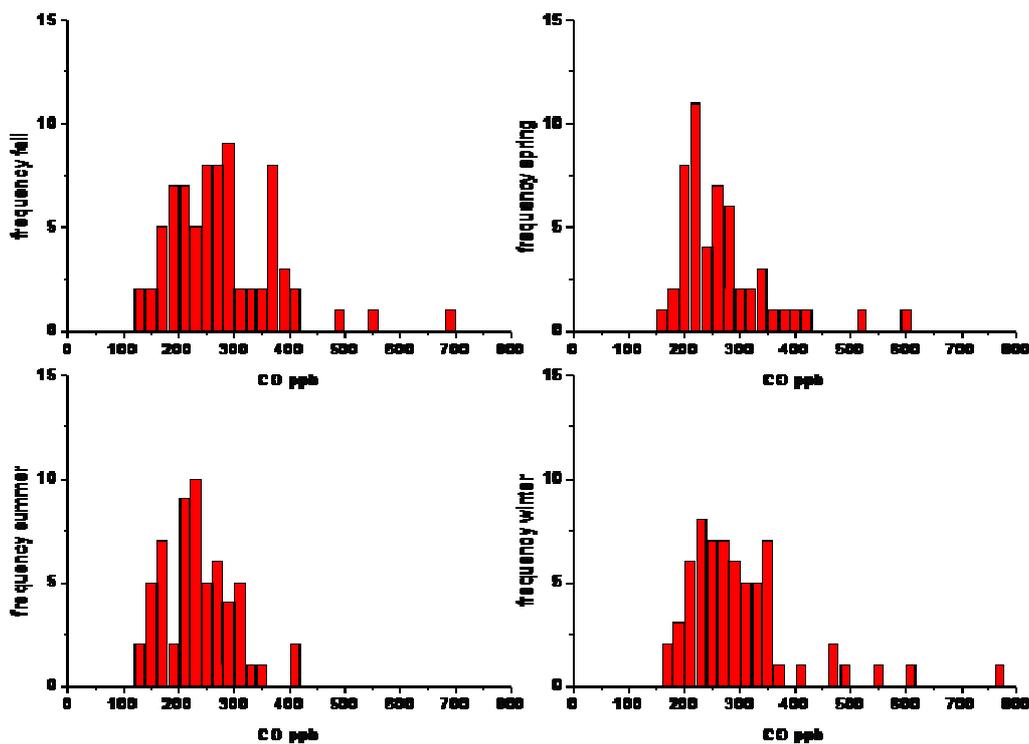
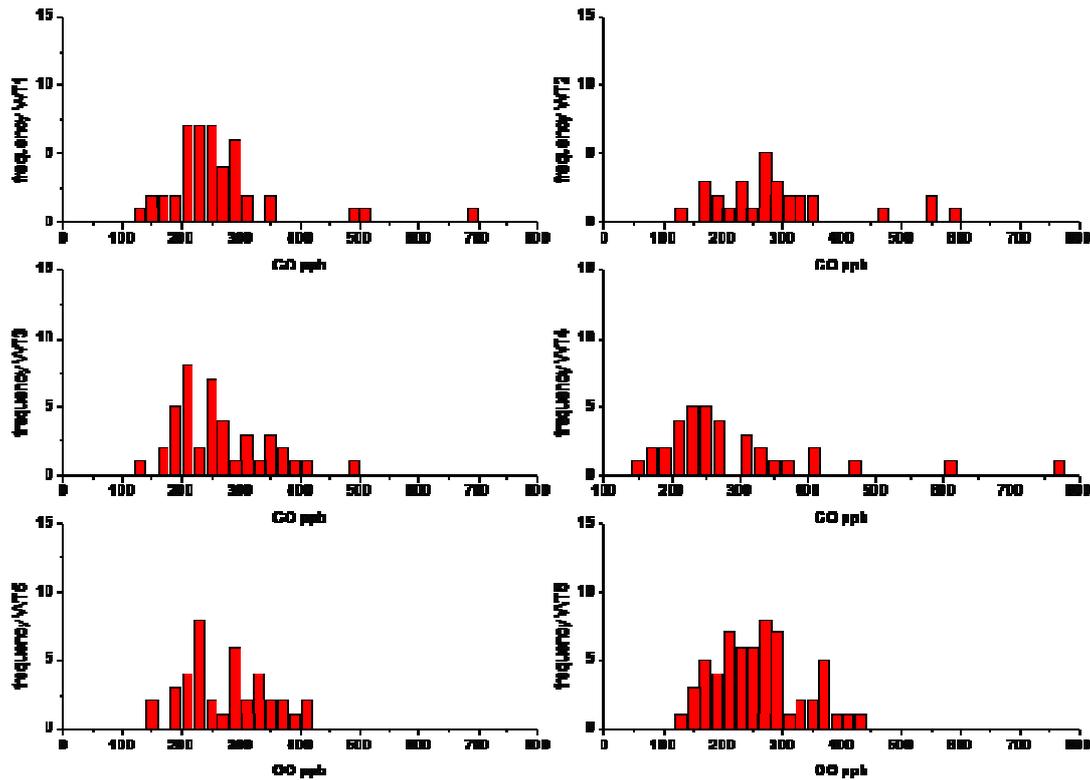


Abbildung 5.16 Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 0 - 500 Meter, Jahreszeiten

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen



**Abbildung 5.17** Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 0 - 500 Meter, Wetterlagen

Die Konzentrationen nach Wetterlagen in Abb. 5.17 zeigen leicht höhere Werte bei den Wetterlagen 2, 4 und 5, die vornehmlich im Winter auftreten. Owen et al. (2006) finden unterhalb von 3000 Metern *low level transport* und hierin Advektion als Ursache für die Kohlenmonoxidverteilung über den USA und dem Nordatlantik (Owen et al. 2006). Sie detektieren das Wirkungsgefüge der Bodendruckgebilde (Azoren- und Bermudahoch und nördliche Tiefdruckgebiete) als Transportmechanismen für Kohlenmonoxidkonzentrationen in den unteren 3000 Metern, der unteren marinen freien Troposphäre über dem Atlantik. Damit werden die belasteten Luftmassen über der marinen Grenzschicht transportiert und unterscheiden sich in ihrer chemischen Zusammensetzung von dieser. Bei Betrachtung der freien Troposphäre über den USA im Bereich der Flughäfen zeigt sich ein mit der Höhe zunehmendes Frühjahrs- und Sommermaximum bzw. höhere Werte in den Wetterlagen 1, 3 und 6, die vornehmlich im Frühjahr und Sommer auftreten (vgl. Abb. 5.18 und 5.19 bzw. 5.20 und 5.21).

5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

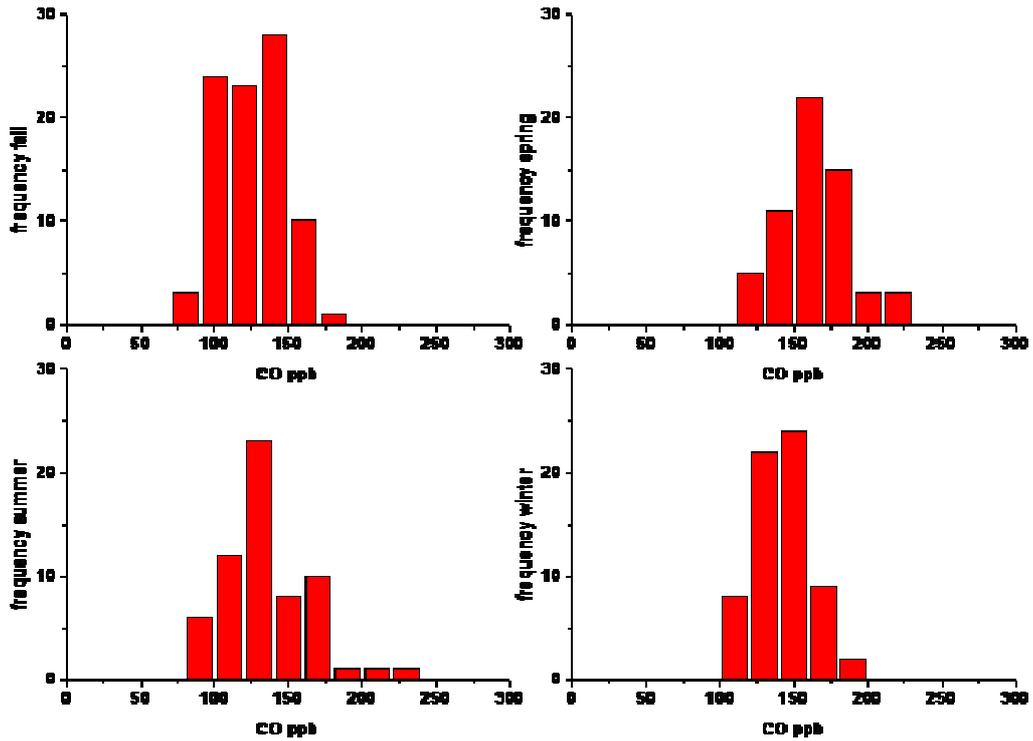


Abbildung 5.18 Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 2500-3000 Meter, Jahreszeiten

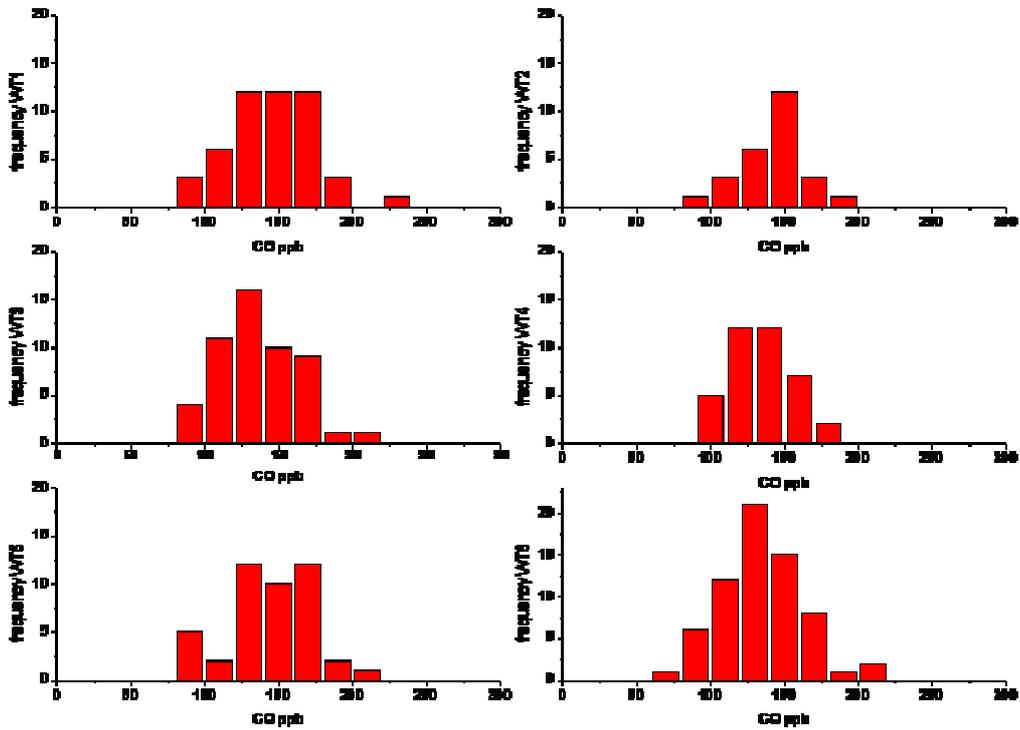


Abbildung 5.19 Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 2500 - 3000 Meter, Wetterlagen

5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

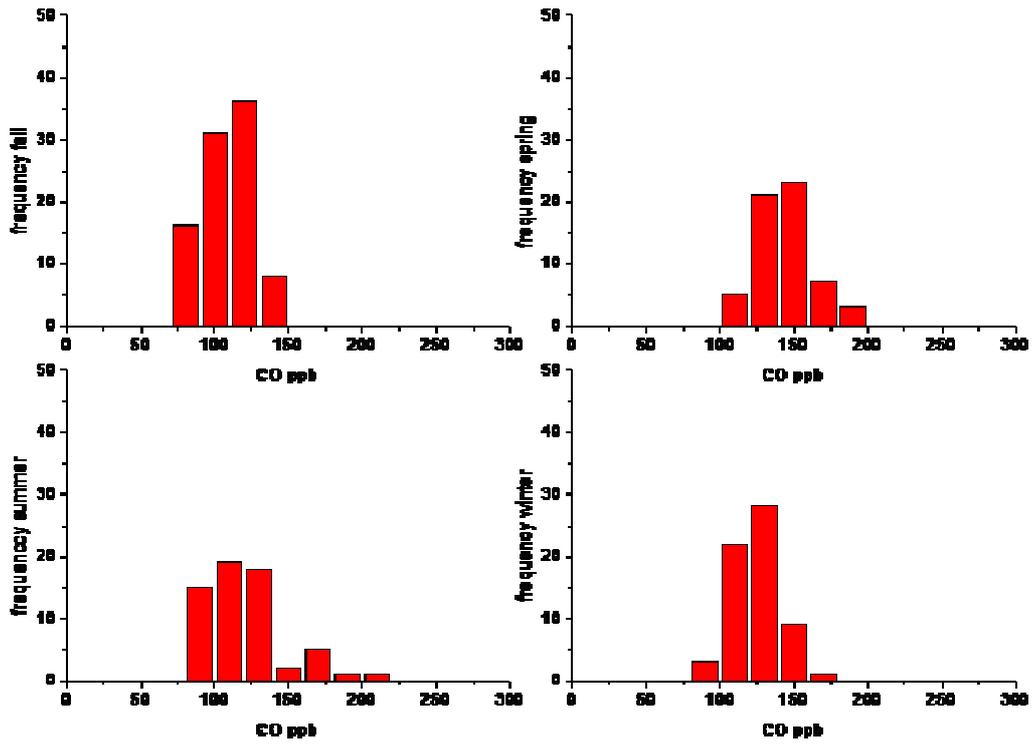


Abbildung 5.20 Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 4500-6000 Meter, Jahreszeiten

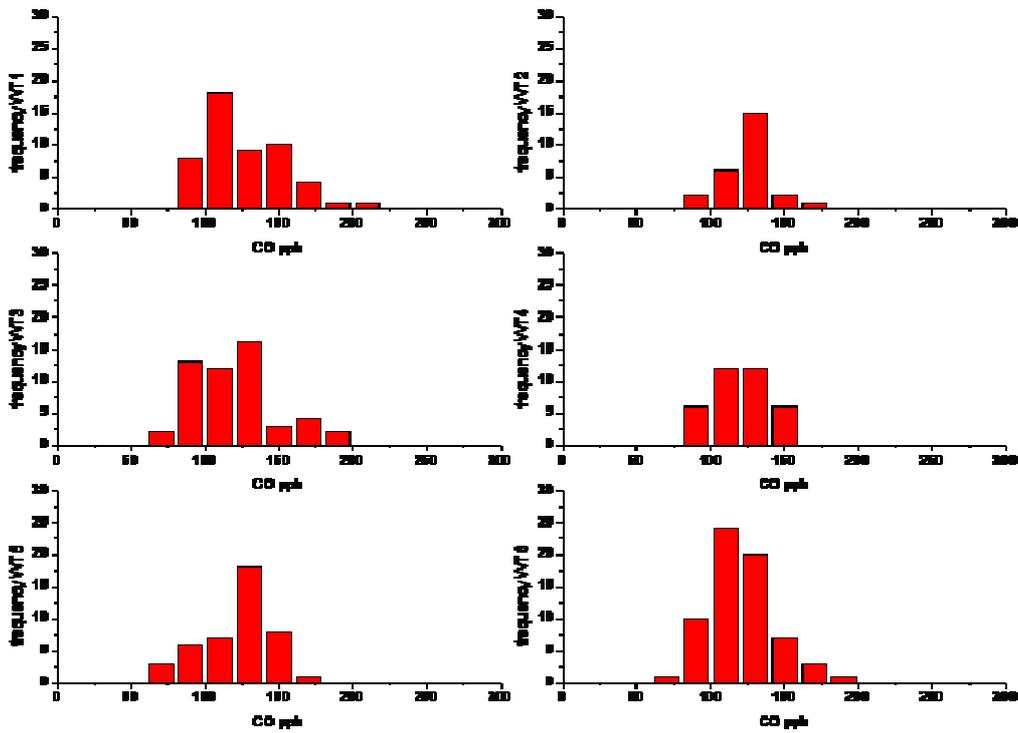


Abbildung 5.21 Häufigkeitsverteilungen Kohlenmonoxid New York, 4500 - 6000 Meter, Wetterlagen

## 5. Klassifizierung der MOZAIC-Daten anhand von Wetterlagen

Das Frühjahrs- bzw. Sommermaximum in der oberen Troposphäre steht in Übereinstimmung mit Abb.4.2 und 4.4. Es besteht somit ein Transportmechanismus in den unteren bodennahen Schichten der Troposphäre über dem Osten der USA, den *warm conveyor belts*, der für den Abtransport belasteter Luft in Richtung Atlantik sorgt (vgl. Owen et al. 2006). Im Einfluss der im Winter oft auftretenden Wetterlagen 2 und 4 liegen die Flughäfen an der Südwestflanke eines mächtigen Tiefdruckgebietes, in dessen Wirkungsbereich im Vorfeld von Kaltfronten *warm conveyor belts* besonders häufig auftreten. Diese bewirken einen raschen Transport nord-amerikanischer Emissionen in die mittlere und obere Troposphäre [Europas] (vgl. Stohl 2001). In Anbetracht dieser Überlegung erreichen die hohen bodennahen CO-Konzentrationen höhere Troposphärenschichten oberhalb ihres Quellgebietes nicht, da sie abtransportiert werden. Für die hohen Konzentrationen im Frühjahr und Sommer in der oberen Troposphäre sprechen Waldbrände und Biomasseverbrennung, die durch die Wärmefreisetzung starke Konvektionswirkung entwickeln und die Spurengase bis hoch in die Troposphäre eintragen können (Nédélec et al. 2005, Kiley et al. 2003).

## 6. ZUSAMMENFASSUNG

Ziel der Arbeit war eine Untersuchung der Konzentrationsverteilungen von Ozon und seinen Vorläufersubstanzen Kohlenmonoxid und Stickoxiden in der Troposphäre. Es erfolgte eine schrittweise Annäherung an den Datensatz unter Berücksichtigung klimageographischer Aspekte. Zunächst wurden die Spurenstoffverteilungen in Reiseflughöhe im Tropopausenbereich betrachtet. In den Verteilungen in der oberen Troposphäre entlang der MOZAIC-Flugrouten fielen bestimmte Regionen auf, in denen die Konzentrationen von Ozon und Stickoxiden höher als in anderen Regionen sind. Kohlenmonoxid ist aufgrund seiner langen Lebensdauer von mehreren Monaten räumlich weniger variabel und in der Troposphäre homogener durchmischt. Um den synoptischen Einfluss von starken Konvektionsprozessen und Blitzen auf die Stickoxid- Ozon- und Kohlenmonoxidkonzentration in der oberen Troposphäre zu untersuchen, wurden NASA-Blitzdaten und die ausgehende langwellige Strahlung für zwei Fallbeispiele im Juli 2004 ausgewertet. Es zeigte sich, dass in der mittleren Troposphäre eine hohe positive Korrelation zwischen den Stickoxidkonzentration und den Kohlenmonoxidkonzentration vorherrscht bei starker Konvektion aus der Grenzschicht. Bei starkem Gewitter sind die Stickoxidkonzentrationen erhöht, die Kohlenmonoxid-Konzentrationen hingegen nicht. Die Korrelation ist schwach positiv.

Die hohen Konzentrationen von Ozon und Stickoxiden treten über der Ostküste Nordamerikas und Ostasiens sowie über der arabischen Halbinsel auf. Diese Regionen gehören jeweils charakteristischen klimageographischen Großräumen an. Daher wurden im nächsten Schritt die MOZAIC-Flughäfen in Klassen eingeteilt, basierend auf den von Köppen und Geiger entwickelten Klimazonen. Es wurden 50 Flughäfen, die jeweils mehr als 50 Vertikalprofile aus dem MOZAIC-Datensatz durch Starts und Landungen enthielten, weltweit ausgewählt. Für exemplarische Flughäfen wurden Vertikalprofile des Medians sowie der Perzentile für Ozon, Kohlenmonoxid und Stickoxide dargestellt. Es zeigt sich, dass besonders in den Mittelbreiten die beiden Klimazonen Cfa und Cfb untereinander jeweils sehr ähnliche Profile aufweisen. Auch die mediterranen Klimate Cs untereinander zeigen sehr ähnliche Ozonprofile. Die tropischen Ozonprofile gleichen sich überwiegend mit geringen

## 6. Zusammenfassung

Ozonkonzentrationen von der planetaren Grenzschicht bis in die obere Troposphäre. In den Tropen liegt aufgrund der hohen Einstrahlung und als Folge der Hadley-Zirkulation die Troposphäre höher, daher werden stratosphärische Luftmassen – gekennzeichnet durch erhöhte Ozonkonzentrationen - von den Flugzeugen nicht passiert. Diese Befunde bestätigten die Vermutung einer Ähnlichkeit von Konzentrationsverteilungen in klimageographischen Einheiten.

Weiter wurden Wind- und Spurenstoffrosen nach den Jahreszeiten Frühjahr, Sommer, Herbst und Winter der 50 Flughäfen in Bodennähe und oberhalb der Grenzschicht erstellt, dokumentiert und exemplarisch ausgewertet. Diese geben einen Hinweis auf den Einfluss der Anströmrichtung. Dazu wurden die Positionen der 50 global verteilten Flughäfen zu den Städten mithilfe der Software Google Earth bestimmt und dokumentiert. Die Windrosen belegen, dass die Konzentrationen der Spurenstoffe Ozon und Kohlenmonoxid im Umfeld der Flughäfen von der Anströmrichtung bestimmt werden. Stickoxide wurden in der Grenzschicht nicht gemessen. Liegt der Flughafen unmittelbar windabwärts industriereicher Agglomerationen, sind die Ozonkonzentrationen geringer und die Kohlenmonoxidkonzentrationen höher. Dies ist am Beispiel New York gut dokumentiert. Der Flughafen von Boston liegt nur unwesentlich entfernt in der gleichen Klimazone und weist höhere Ozonwerte im Sommer sowie niedrigere Stickoxidwerte auf.

Schließlich sind für Flughäfen gleicher Klimazonen Jahresgänge aus den Monatsmittelwerten der verschiedenen Spurenstoffe für verschiedene Höhengniveaus ermittelt worden. In den Tropen zeigen sich niedrige Ozonkonzentrationen von der Grenzschicht bis in 12 km Höhe. Ein markanter Anstieg der Konzentrationen, der die Tropopause markiert, ist nicht erkennbar. Diese liegt oberhalb der Reiseflughöhe der Flugzeuge. In den Trockenzeiten der wechselfeuchten Tropen liegt die Ozonkonzentration höher. In den Mittelbreiten der westlichen Teile der Kontinente ist der Verlauf von einem breiten Sommermaximum in der oberen Troposphäre gekennzeichnet. In den östlichen Teilen der Kontinente ist das Maximum steiler ausgeprägt und auf den Frühsommer konzentriert. In Ostasien ist in der mittleren Troposphäre ein Sommerminimum zu erkennen, im Osten der USA hingegen ein Sommermaximum. In den unteren Troposphärenschichten liegt das Ozonmaximum im Frühjahr ebenso wie das der Stickoxidkonzentrationen. Aufgrund dieses gemein-

## 6. Zusammenfassung

samen Maximums im unteren Troposphärenbereich wird auf einen geringen  $\text{NO}_x$ -Anteil und einen hohen  $\text{NO}_z$ -Anteil im  $\text{NO}_y$  geschlossen.

Auch im Wasserdampfmischungsverhältnis zeigt sich die Differenzierung zwischen Ost- und Westseiten der Kontinente. Über den Ostseitenkontinenten USA und Asien ist die Konvektion durch feuchtwarme Luftmassen aus den Golfregionen der jeweiligen Regionen (Golf von Mexiko, Östliches und Südchinesisches Meer) stärker ausgeprägt, führt zu höheren Temperaturen und höherem Wasserdampfgehalt. Auf der Westseite Europas ist der Jahresverlauf der Wasserdampfmischungsverhältnisse flacher ausgeprägt bei niedrigeren Absolutwerten.

Die unterschiedlichen Vertikalprofile und Jahrgänge in ähnlichen Breitenlagen und im Fall von dem Osten der USA und Ostasien in der gleichen Klimazone bei einer annähernd vergleichbaren Industriedichte führte schließlich zu der Überlegung, die Daten anhand von Wetterlagen zu klassifizieren. Aufgrund der eingehenden Analyse verschiedener Flughäfen im Osten der USA im Vorfeld, einer hohen Datendichte sowie bereits vorliegender Zirkulationsmuster (Vrac et al. 2007) zur Evaluierung des Klassifikationsansatzes wurde die Ostküste der USA für das Erstellen einer Wetterlagenklassifikation gewählt. Der verwendete Klassifikationsansatz basiert auf der Methode eines Neuronalen Netzwerks, sogenannter Self-Organising Maps. Sechs Zirkulationsmuster für das Meeresdruckniveau bildeten die Grundlage für die Klassifizierung der Daten im Bereich der Flughäfen und für das gesamte Gebiet in verschiedenen Höhengniveaus der Troposphäre. Sie wurden zunächst mit den Ergebnissen einer hierarchischen Clusteranalyse und eines Expectation-Maximization-Algorithmus (Vrac et al. 2007) für den gleichen Raum und den übereinstimmenden Zeitraum verglichen. In der Tendenz erzielten alle drei Ansätze ähnliche Zirkulationsmuster im Hinblick auf typische Zirkulationsmuster im Sommer und im Winter. Im Übrigen war - erkennbar in der Kreuztabellierung der Häufigkeiten der Tage nach Wetterlagen - die Übereinstimmung gering. Zum Vergleich der Cluster wurde mit dem Rand-Index ein Instrument zum Maß der Übereinstimmung im Auftreten der Cluster eingeführt und aufgrund der unterschiedlichen Clusteranzahl angepasst. Nach neuen Arbeiten (Huth 2008) ist die mäßige Übereinstimmung zwischen den verschiedenen Klassifikationsmethoden ein bekanntes und bislang nicht gelöstes Problem. Die für den MOZAIC-Messzeitraum zur Verfügung stehende Zeitreihe der Wetterlagen aus der Klassifizierung durch Self-Organising Maps in

## 6. Zusammenfassung

täglicher Auflösung wurde schließlich Tagesmittelwerten der Spurenstoffkonzentrationen von 1994 bis 2005 zugeordnet.

Wetterlagen, die hauptsächlich im Sommer bzw. im Winter auftreten, zeigten ähnliche Konzentrationen von Ozon, Wasserdampf und Kohlenmonoxid. Durch die Unterteilung in Wetterlagen werden Konzentrationsverteilungen spezifiziert. Das Sommermaximum von Ozon in der unteren Troposphäre beispielsweise wird einerseits durch stratosphärischen Eintrag am Rand eines im Sommer über dem Osten der USA besonders häufig auftretenden Tiefdruckgebietes ausgelöst. Auch die herantransportierten Vorläufersubstanzen Kohlenmonoxid und Stickoxide bewirken innerhalb langsam transportierter Luftmassen, sogenannter *warm conveyor belts*, photochemische Ozonproduktion in der freien Troposphäre, die noch durch die häufig im Sommer auftretenden und  $\text{NO}_x$ -produzierenden Gewitter unterstützt wird. Diese synoptischen Situationen können bestimmten Wetterlagen zugeordnet werden. Kohlenmonoxidkonzentrationen werden in Bodennähe von der Anströmrichtung des Windes beeinflusst. Der Spurenstoff mit der Lebensdauer von mehreren Monaten wird ebenfalls unter Einwirkung der *warm conveyor belts* im Frühjahr und Sommer beeinflusst und mit einer westlichen Strömung in Richtung Atlantik abtransportiert. Die Wetterlagen tragen dazu bei, das Maximum in Bodennähe im Winter gegen die höheren Werte im Frühjahr und Sommer in der oberen Troposphäre näher zu spezifizieren.

Die Klassifikation der Spurengase nach Wetterlagen liefert zusätzlich zum saisonalen Strahlungseintrag Informationen im Hinblick auf Druckverteilung und Anströmrichtung des Windes. Da die Zirkulationsmuster das Ergebnis strahlungsbedingter, thermischer Ausgleichsströmungen sind, ist zusätzlich die Information des Sonnenstandes, also der Jahreszeit, von Bedeutung. Dies hat am Beispiel der Ostküste der USA gezeigt, dass Wetterlagen, die vornehmlich im Winter auftreten, ähnliche Konzentrationsverteilungen aufweisen wie im Winter allgemein festgestellt werden. Das gleiche gilt für Wetterlagen, welche im Sommer häufig auftreten.

Die Einteilung nach Wetterlagen stellt eine Möglichkeit dar, Konzentrationsverteilungen als direktes Resultat der strahlungsbedingten Druckverteilung auf der Erde und der damit verbundenen Strömungsverteilung der Luftmassen zu charakterisieren. Dies ermöglicht eine breiten- und längengerechte Einteilung geographischer Raumeinheiten, welche, wie die vorliegende Arbeit zeigt, auch

## 6. Zusammenfassung

Ähnlichkeiten in der Konzentrationsverteilung verschiedener Spurenstoffe aufweisen. Somit können für bestimmte Spurengaskonzentrationen verantwortliche und in vielen Fallstudien diesbezüglich nachgewiesene synoptische Situationen geographischen Raumeinheiten und als solchen den jeweils typischen Zirkulationsbedingungen in den troposphärischen Stockwerken und saisonalen Strahlungsbedingungen zugewiesen werden.

## LITERATURVERZEICHNIS

Ancellet, G. und Beekmann, M. Ozone Monitoring and Measurements. In: Hov, O. (ed.) Transport and Chemical Transformation of Pollutants in the Troposphere: Vol. 6 Tropospheric Ozone Research – Tropospheric Ozone in the Regional and Sub-regional Context. Berlin, Heidelberg: Springer, 1997

Bahrenberg, G, Giese, E., Mevenkamp, M. Statistische Methoden in der Geographie, Bd.1, Univariate und bivariate Statistik. Stuttgart, Borntraeger 1999

Barry, R.G., R.J. Chorley. *Atmosphere, Weather and Climate*. New York: Routledge, 1998.

Beck, C. und Philipp, A. „Zirkulationsklassifikationen für den nordatlantisch-europäischen Sektor - Überblick und Vergleich verschiedener Klassifikationsmethoden.“ *Tagungsband 27. Jahrestreffen des AK Klima in Aachen 31.10. - 02.11.2008*. Aachen: Geographisches Institut der RWTH-Aachen, 2008. 16.

Cassano, E.N., Lynch, A.H., Cassano, J.J., Koslow, M. Classification of synoptic patterns in the western arctic associated with extreme events at Barrow, Alaska. *Climate Research, Vol. 30, 83 - 97*, 2006

Chameides, W., und Walker, J. A Photochemical Theory of Tropospheric Ozone, *Journal of Geophysical Research*, 78 (36), 8751-8760 1973.

Choi, Y., Y. Wang, T. Zeng, R.V. Martin, T.P. Kurosu, K. Chance. „Evidence of lightning NO<sub>x</sub> and convective transport of pollutants in satellite observations over North America.“ *Journal of Geophysical Research, Vol. 32, L02805, doi:10.1029/2004GL021426*, 2005: L02805 1 - 5.

Creilson, J.K., J. Fishman, A.E. Wozniak. „Intercontinental transport of tropospheric ozone: a study of its seasonal variability across the North Atlantic utilizing tropospheric ozone residuals and its relationship to the North Atlantic Oscillation.“ *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3, 2003: 2053 - 2066.

Crutzen, P.J. A discussion of the chemistry of some minor constituents in the stratosphere and troposphere. *Pure App. Geophys.*, 106-108, 1385-1399, 1973.

Crutzen, P. The Role of NO and NO<sub>2</sub> in the Chemistry of the Troposphere and Stratosphere. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*. Vol. 7: 443-472, 1979

## Literaturverzeichnis

- Davies, T.D., E. Schuepbach. „Episodes of high ozone concentrations at the earth's surface resulting from transport down from the upper troposphere/lower stratosphere: a review and case studies.“ *Atmospheric Environment*, Vol. 28, No. 1, 21. March 1993: 53-68.
- DeCaria, A. J., K. E. Pickering, G. L. Stenchikov, J. R. Scala, J. L. Stith, J. E. Dye, B. A. Ridley, and P. Laroche (2000), A cloud-scale model study of lightning-generated NO<sub>x</sub> in an individual thunderstorm during STERAO-A, *Journal of Geophysical Research*, 105, 11,601– 11,616.
- DeCaria, A. J., K. E. Pickering, G. L. Stenchikov, and L. E. Ott (2005), Lightning-generated NO<sub>x</sub> and its impact on tropospheric ozone production: A three-dimensional modeling study of a Stratosphere-Troposphere Experiment: Radiation, Aerosols and Ozone (STERAO-A) thunderstorm, *Journal of Geophysical Research*., 110, D14303, doi:10.1029/2004JD005556. 2005
- Denman, K.L., G. Brasseur, A. Chidthaisong, P. Ciais, P.M. Cox, R.E. Dickinson, D. Hauglustaine, C. Heinze, E. Holland, D. Jacob, U., Lohmann, S Ramachandran, P.L. da Silva Dias, S.C. Wofsy and X. Zhang, 2007: Couplings Between Changes in the Climate System and Biogeochemistry. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M.Tignor and H.L. Miller (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Dodge, Y. *The concise Encyclopedia of Statistics*. Berlin: Springer, 2008
- Eckey, H.-F., R. Kosfeld, M. Rengers. *Multivariate Statistik - Grundlagen, Methoden, Beispiele*. Wiesbaden: Gabler, 2002.
- Ehhalt, D.H., Rohrer, F., Wahner, A. Sources and distribution of NO<sub>x</sub> in the upper troposphere at the northern midlatitudes. *Journal of Geophysical research*, 97, 3725-3738, 1992
- Ehhalt, D.H. „Gas Phase Chemistry of the Troposphere.“ In *Global Aspects of Atmospheric Chemistry*, von R. Zellner (Guest Editor), 21 - 109. Darmstadt, New York: Steinkopff, Springer, 1999.
- Emmons, L.K., D.A. Haugustlaine, J.-F. Müller, M.A. Carroll, G.P. Brasseur, D. Brunner, J. Staehelin, V. Thouret, A. Marengo. „Data composites of airborne observations of tropospheric ozone and its precursors.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 105, No. D16, 2000: 20497-20538.
- Emmons, L.K., M.A. Carroll, D.A. Haugustlaine, G.P. Brasseur, C. Atherton, J. Penner, S. Sillman, H. Levy, F. Rohrer, W.M.F. Wauben, P.F.J. von Velthoven, Y. Wang, D. Jacob, P. Bakwin, R. Dickerson, B. Doddridge, C. Gerbig, R. Honrath, G. Hübler et al. „Climatologies of NO<sub>x</sub> and NO<sub>y</sub>: A comparison of data and models.“ *Atmospheric Environment*, 1997: 1851-1904.
- Fabian, P. *Atmosphäre und Umwelt*. Berlin: Springer, 1992

## Literaturverzeichnis

Finlayson-Pitts, B.J. und Pitts, J.N. Chemistry of the upper and lower atmosphere: theory, experiments and applications. San Diego, London: Academic Press, 1999

Flatoy, F. and O. Hov. „Three-dimensional model studies of the effect of NO<sub>x</sub> emissions from aircraft on ozone in the upper troposphere over Europe and the North Atlantic.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 101, No. D1, 20. Januar 1996: 1401-1422.

Gerstengarbe, F.W., P.C. Werner, U. Rüge. Katalog der Großwetterlagen Europas (1881 - 1998) Nach Paul Hess und Helmuth Brezowsky. 5., verbesserte und ergänzte Auflage. Potsdam, Offenbach a. M., 1999. URL: <http://www.pikpotsdam.de/~uwerner/gwl/welcome.htm>. Zugriff: 20.09.2007

Graedel, T.E. and P. Crutzen. *Chemie der Atmosphäre*. Heidelberg, Berlin, Oxford: Spektrum, 1994.

Guderian, R. (Hrsg.) Handbuch der Umweltveränderungen und Ökotoxikologie. Bd. 1A Atmosphäre. Berlin, Heidelberg, New York: Springer 2000

Häckel, H. *Meteorologie*. Stuttgart: Ulmer, 1999

Haagen-Smit, A.J. Air conservation: With discovery of the sources and chemical reactions of pollutants, the stage is set for conservation. *Science*, 128, 869-879, 1958

Heald, C. L., et al., Asian outflow and trans-Pacific transport of carbon monoxide and ozone pollution: An integrated satellite, aircraft, and model perspective, *Journal of Geophysical Research*, 108(D24), 4804, doi:10.1029/2003JD003507, 2003.

Heise, S., Wickert, J., Beyerle, G., Schmidt, T. Smit, H., Cammas, J- P., and Rothacher, M. “Comparison of Water Vapor and Temperature Results from GPS Radio Occultation Aboard CHAMP with MOZAIC Aircraft Measurements.“ *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, Vol. 46, 11, 2008

Hewitson, B.C., Crane, R.G. Self-organizing Maps: applications to synoptic climatology. *Climate Research*, 25, 2005: 243-250

Holton, J.R. *An Introduction to Dynamic Meteorology*. San Diego, London: Academic Press, 1992.

Horowitz, L.W., S. Walters, D.L. Mauzerall, L.K. Emmons, P.J. Rasch, C. Granier, X. Tie, J.-F. Lamarque, M.G. Schultz, G.S. Tyndall, J.J. Orlando, G.P. Brasseur. „A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 108, NO. D24, 4784, doi:10.1029/2002JD002853, 24. December 2003.

Huth, R. Beck, C., Philipp, A., Demuzere, M., Ustrnul, Z., Cahynová, M., Kyselý, Tveito, O.E. “Classifications of Atmospheric Circulation Patterns – Recent Advances and Applications.“ *Trends and Directions in Climate Research: Ann. N.Y. Acad. Sci.* 1146 2008: 105-152

## Literaturverzeichnis

Johnson, C., J. Henshaw, G. McInnes. „Impact of aircraft and surface emissions of nitrogen oxides on tropospheric ozone and global warming.“ *Nature*, 2. January 1992: 69-71.

Kalabokas, P. D., A. Volz-Thomas, J. Brioude, V. Thouret, J.-P. Cammas, C. C. Repapis. „Vertical ozone measurements in the troposphere over the Eastern Mediterranean and comparison with Central Europe.“ *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 2007: 3783-3790.

Kalkstein, L. S., M. C. Nichols, C. D. Barthel, J. S. Greene. „A New Statistical Synoptic Classification: Application to Air-Mass Analysis.“ *International Journal of Climatology*, Vol. 16, 1996: 983-1004.

Kalnay, E., Kanamitsu, M., Kistler, R., Collins, W., Deaven, D., Gandin, L., Iredell, M., Saha, S., White, G., Woollen, J., Zhu, Y., Chelliah, M., Ebisuzaki, W., Higgins, W., Janowiak, J., Mho, K., Ropelewski, C., Wang, J., Leetmaa, A., Reynolds, R., Jenne, R., Joseph, D. The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project. *Bulletin of the American Meteorological Society* 77, 1996: 437-471

Kanakidou, M., P.J. Crutzen. „The photochemical source of carbon monoxide: Importance, uncertainties and feedbacks.“ *Chemosphere - Global Change Science*, 1999: 91-109.

Kiley, C., H.E. Fuelberg, P.I. Palmer, D.J. Allen, G.R. Carmichael, D.J. Jacob, C. Mari, R.B. Pierce, K.E. Pickering, Y. Tang, O. Wild, T.D. Fairlie, J.A. Logan, G.W. Sachse, T.K. Shaak, D.G. Streets. „An intercomparison and evaluation of aircraft-derived and simulated CO from seven chemical transport models during the TRACE-P experiment.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 108, No. D21, 8819, doi:10/1029/2002JD003089, 2003.

Kley, D., H. Geiss, V. Mohnen. „Tropospheric ozone at the elevated sites and precursor emissions in the United States and Europe.“ *Atmospheric Environment*, Vol. 28, No. 1, 1994: 149-158.

Kottek, M., J. Grieser, C. Beck, B. Rudolf, and F. Rubel, 2006: HYPERLINK "[http://koeppen-geiger.vu-wien.ac.at/pdf/metz\\_15\\_3\\_0259\\_0263\\_kottek\\_wm.pdf](http://koeppen-geiger.vu-wien.ac.at/pdf/metz_15_3_0259_0263_kottek_wm.pdf)" \t "\_blank" [World Map of the Köppen-Geiger climate classification updated](#) . *Meteorol. Z.*, **15**, 259 - 263. HYPERLINK "<http://dx.doi.org/10.1127/0941-2948/2006/0130>" \t "\_new" [DOI: 10.1127/0941-2948/2006/0130](#)

Keysik, E. Statistische Methoden und ihre Anwendungen. Vandenhoeck und Ruprecht 1973

Laboratoire d'Aérodologie 20.09.2008: Übersicht der MOZAIC-Flugrouten. © 1994-2007 Laboratoire d'Aérodologie, O.M.P. Toulouse. URL: <http://mozaic.aero.obs-mip.fr/web/features/information/map.html>

Labrador, L. J., von Kuhlmann, R., Lawrence, M. G. The effects of lightning-produced NO<sub>x</sub> and its vertical distribution on atmospheric chemistry: sensitivity simulations with MATCH-MPIC. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 4, 6239–6281, 2004

Lauer, W., J. Bendix. *Klimatologie*. Das Geographische Seminar. Braunschweig Westermann 2006

## Literaturverzeichnis

Liu, S. C., F. C. Fehsenfeld, D. D. Parrish, E. J. Williams, D. W. Fahey, P. C. Murphy. „Ozone Production in the Rural Troposphere and the Implications for Regional and Global Ozone Distributions.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 92 NO. D4, 20. April 1987: 4191-4207.

Lippe, W.-M. Soft-Computing. Berlin, Heidelberg Springer 2006

Logan, J. A. „Ozone in Rural Areas of the United States.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 94 NO.D6, 20. June 1989: 8511-8532.

Logan, J.A., I.A. Megretskaja, A.J. Miller, G.C. Tiao, D. Choi, L. Zhang, R.S. Stolarski, G.J. Labow, S.M. Hollandsworth, G.E. Bodeker, H. Claude, D. De Muer, J.B. Kerr, D.W. Tarasick, S.J. Oltmans, B. Johnson, F. Schmidlin, J. Staehelin, P. Viatte, O.Uch. „Trends in the vertical distribution of ozone: An analysis of ozonesonde data.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 99, NO.D12, 20. Dezember 1994: 25.553 - 25.585.

Logan, J.A. „An analysis of ozonesonde data for the troposphere: Recommendation for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 104, No. D13, 1999: 16115-16149.

Logan, J.A., I.A. Megretskaja, A.J. Miller, G.C. Tiao, D. Choi, L. Zhang, R.S. Stolarski, G.J. Labow, S.M. Hollandsworth, G.E. Bodeker, H. Claude, D. De Muer, J.B. Kerr, D.W. Tarasick, S.J. Oltmans, B. Johnson, F. Schmidlin, J. Staehelin, P. Viatte, O.Uchino. „Trends in the vertical distribution of ozone: A comparison of two analyses of ozone data.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 104, No. D21, 20. November 1999: 26373 - 26399.

Lynch, A., Uotila, P., Cassano, J.J. Changes in synoptic weather patterns in the polar regions in the twentieth and twenty-first centuries, part 2: Antarctic. *International Journal of Climatology*, 26, 2006: 1181-1199

Marengo, A., V. Thouret, P. Nedelec, H. Smit, M. Helten, D. Kley, F. Karcher, P. Simon, K. Law, J. Pyle, G. Poschmann, R. von Wrede, C. Hume, T. Cook. „Measurement of ozone and water vapor by Airbus in-service aircraft: The MOZAIC airborne programme, An overview.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 103, NO.D19, 20. Oktober 1998: 25631 - 25642.

Meixner, F.X., Kesselmeier, J., Vogel, B. (2000), Räumliche und zeitliche Verteilung biogener Quellen der Vorläufersubstanzen für Ozon, *promet*, 3 / 4, 17-26.

Morey, L. C., A. Agresti. „The Measurement of Classification Agreement: An Adjustment to the Rand Index for Chance Agreement.“ *Educational and Psychological Measurement*, 44, 1984: 33 - 37.

Nakamura, K., Y. Kondo, G. Chen, J.H. Crawford, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, Y. Miyazaki, R.E. Shetter, B.L. Lefer, M. Avery, J. Matsumoto. „Measurement of NO<sub>2</sub> by the photolysis conversion

technique during the Transport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P) campaign.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 108, No. D24, 4752, doi:10.1029/2003JD003712, 2003.

National Aeronautics and Space Administration (NASA): INTEX-Feldkampagne: INTEX-NA (INtercontinental chemical Transport EXperiment - North America), im Auftrag der NASA, URL: <http://croc.gsfc.nasa.gov/intex/> 04.07.2005. Freundliche Genehmigung von Dr. K. Pickering, Goddard Space Flight Centre, Maryland

Nedelec, P., J.-P. Cammas, V. Thouret, G. Athier, J.-M. Cousin, C. Legrand, C. Abonnel, F. Lecoer, G. Cayez, and C. Marizy. „An improved infrared carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft: technical validation and first scientific results of the MOZAIC III programme.“ *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3, 2003: 1551 - 1564.

Nedelec P., V. Thouret, J. Brioude, B. Sauvage, J.-P. Cammas, A. Stohl. “Extreme CO concentrations in the upper troposphere over northeast Asia in June 2003 from the in situ MOZAIC aircraft data.” *GEOPHYSICAL RESEARCH LETTERS*, VOL. 32, doi:10.1029/2005GL023141, 2005

Neumann, J.A., R.S. Gao, D.W. Fahey, J.C. Holecek, B.A. Ridley, J.G. Walega, F.E. Grahek, E.C. Richard, C.T. McElroy, T.L. Thompson, J.W. Elkins, F.L. Moore, E.A. Ray. „In situ measurements of HNO<sub>3</sub>, NO<sub>y</sub>, NO, and O<sub>3</sub> in the lower stratosphere and the upper troposphere.“ *Atmospheric Environment* 35, 2001: 5789 - 5797.

Nielsen, T., Granby, K., Egelov, A.H., Hummelshoj, P. und Skov, H. Atmospheric Nitrogen Compounds, Photochemical Oxidants and Products. In: Hov, O. (ed.) Transport and Chemical Transformation of Pollutants in the Troposphere: Vol. 6 Tropospheric Ozone Research – Tropospheric Ozone in the Regional and Sub-regional Context. Berlin, Heidelberg: Springer, 1997

Oltmans, S.J., Lefohn, A.S., Harris, J.M., Galbally, I., Scheel, H.E., Bodeker, G., Brunke, E., Claude, H., Tarasick, D., Johnson, B.J., Simmonds, P., Shadwick, D., Anlauf, K., Hayden, K., Schmidlin, F., Fujimoto, T., Akagi, K., Meyer, C., Nichol, S., Davies, J., Redonas, A., and Cuevas, E. “Long-term changes in tropospheric ozone.” *Atmospheric Environment Vol. 40*, 2006:3156 - 3173

Owen, R.C., Cooper, O.R., Stohl, A., Honrath, R.E. “An analysis of the mechanism of Northern American pollutant transport to the central North Atlantik lower free troposphere.” *Journal of Geophysical Research*, Vol 111, 2006 D23S58, doi:10.1029/2006JD007062

Parrington, M., D. B. A. Jones, K. W. Bowman, L. W. Horowitz, A. M. Thompson, D. W. Tarasick, J. C. Witte. „Estimating the summertime tropospheric ozone distribution over North America through assimilation of observations from the Tropospheric Emission Spectrometer.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol 113, D18307, doi:10.1029/2007JD009341, 2008.

Peel, M. C., Finlayson, B. L., and McMahon, T. A.: Updated world map of the Köppen-Geiger climate classification, *Hydrol. Earth Syst. Sci.*, 11, 1633-1644, 2007.

## Literaturverzeichnis

Pickering, K. E., A. M. Thomson, J. R. Scala, W.-K. Tao, R. R. Dickerson, J. Simpson. „Free Tropospheric Ozone Production Following Entrainment of Urban Plumes into Deep Convection.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 97, NO. D16, 20. November 1992: 17.985 - 18.000.

Pickering, K.E., Y. Wang, W.-K. Tao, C. Price, J.-F. Müller. „Vertical distributions of lightning NO<sub>x</sub> for use in regional and global chemical transport models.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 103, No. D23, 20. December 1998: 31203 - 31216.

Price, C., J. Penner, M. Prather. „NO<sub>x</sub> from lightning 1. Global distribution based on lightning physics.“ *Journal of Geophysical Research*, 1997: 5929 - 5941.

Roelofs, G.-J., J. Lelieveld, H.G.J. Smit, D. Kley. „Ozone production and transport in the tropical Atlantic region during the biomass burning season.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 102, No. D9, 20. May 1997: 10637 - 10651.

Sauter, T. und C. Schneider “Classification of synoptic-scale weather patterns in southernmost South America using selforganizing maps.” *Geophysical Research Abstracts*, Vol. 9, 08110, 2007

Scheel, H.-E., Sladkovic, R. und Seiler, W. Ground-based Measurements of Ozone and Related Precursors at 47°N, 11°E. In: Hov, O. (ed.) Transport and Chemical Transformation of Pollutants in the Troposphere: Vol. 6 Tropospheric Ozone Research – Tropospheric Ozone in the Regional and Sub-regional Context. Berlin, Heidelberg: Springer, 1997

Schlager, H., P. Konopka, P. Schulte, U. Schumann, H. Ziereis, F. Arnold, M. Klemm, D. E. Hagen, P. D. Whitefield, J. Ovarlez. „In situ observations of air traffic emission signatures in the North Atlantic flight corridor.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 102, NO.D9, 20. Mai 1997: 10739 - 10750.

Schönwiese, C.-D. *Praktische Statistik für Meteorologen und Geowissenschaftler*. Stuttgart. Borntraeger, 2006.

Schultz, D.M., 2001: Reexamining the Cold Conveyor Belt. *Mon. Wea. Rev.*, 129, 2205–2225.

Schumann, U. “The impact of nitrogen oxides emissions from aircraft upon the atmosphere at flight altitudes – results from the AERONOX Project.” *Atmospheric Environment*, 31, 1997: 1723 - 1733

Schumann, U., H. Huntrieser. „The global lightning-induced nitrogen oxides source.“ *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22. February 2007: 3823 - 3907.

Seiler, W. „The cycle of atmospheric CO.“ *Tellus XXVI*, 1974 1 - 2: 116 - 135.

Seinfeld, J.H., Pandis, S.N. *Atmospheric Chemistry and Physics*. Hoboken, New Jersey. Wiley and sons 2006

## Literaturverzeichnis

Sheridan, S. C. „The Redevelopment of a weather-type classification scheme for North America.“ *International Journal of Climatology*, 22, doi:10.1002/joc.709, 2002: 51 - 68.

Spektrum der Wissenschaft Verlagsgesellschaft mbH (01.11.2008) Lexika, atmosphärische Zirkulation, Zirkulationsprozesse URL: <http://www.wissenschaft-online.de/abo/lexikon/geogr/553>

Staehelin, J., J. Thudium, R. Buehler, A. Volz-Thomas, W. Graber. „Trend in surface ozone concentrations at Arosa (Switzerland).“ *Atmospheric Environment*, 28, 1994: 75 - 87.

Stohl, A. „A 1-year Lagrangian "climatology" of airstreams in the Northern Hemisphere troposphere and the lowermost stratosphere.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 106, D 7, 2001: 7263 - 7279.

Stohl, A., 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.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 104, D23, 1999: 30445 - 30462.

Sutkus, D.J., Jr., S.L.Baughcum, D.P. DuBois “Commercial Aircraft Emission Scenario for 2020: Database Development and Analysis” NASA/CR-2003-212331, May 2003

Tao, Z., S. M. Larson, A. Williams, M.Caughey, D.J. Wuebbles. „Sensitivity of regional ozone concentrations to temporal distribution of emissions.“ *Atmospheric Environment*, 38, 2004: 6279 - 6285.

Thomas, K., A. Volz-Thomas, H.-W. Pätz „Five Years of NO<sub>y</sub> Measurements in the UTLS from MOZAIC“, in preparation

Thompson, A. M., J. B. Stone, J. C. Witte, S. K. Miller, S. J. Oltmans, T. L. Kucsera, K. L. Ross, K. E. Pickering, J. T. Merrill, G. Forbes, D. W. Tarasick, E. Joseph, F. J. Schmidlin, W. W. McMillan, J. Warner, E. J. Hints, J. E. Johnson. „Intercontinental Chemical Transport Experiment Ozone Network Study (IONS) 2004: 2. Tropospheric ozone budgets and variability over northeastern North America.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 112, D12S13, doi:10.1029/2006JD007670, 2007.

Thompson, A. M., Singh, H. B., Schlager, H. „Introduction to special section: Subsonic Assessment Ozone and Nitrogen Oxide Experiment (SONEX) and Pollution From Aircraft Emissions in the North Atlantic Flight Corridor (POLINAT 2).“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 105, NO. D3,, 16. Februar 2000: 3595 - 3603.

Thompson, A.M. K.E. Pickering, R.R. Dickerson, W.G. Ellis, D.J. Jacob, J.R. Scala, W.-K. Tao, D.P. McNamara, J. Simpson. „Convective transport over the central United States and its role in regional CO and ozone budgets.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 99, No. D9, 20. September 1994: 18703 - 18711.

## Literaturverzeichnis

- Thompson, A. M., J. B. Stone, J. C. Witte, S. K. Miller, R. B. Pierce, R. B. Chatfield, S. J. Oltmans, O. R. Cooper, A. L. Loucks, B. F. Taubman, B. J. Johnson, E. Joseph, T. L. Kucsera, J. T. Merrill, G. A. Morris, S. Hersey, G. Forbes, M. J. Newchurch, V. Thouret, J.-C. Cammas. „Intercontinental Chemical Transport Experiment Ozonesonde Network Study (IONS) 2004: 1. Summertime upper troposphere/lower stratosphere ozone over northeastern North America.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 112, D12S12, doi:10.1029/2006JD007441, 2007.
- Thouret, V., A. Marengo, J.A. Logan, P. Nédélec, C. Grouhel. „Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 103, No. D19, 20. October 1998: 25695 - 25720.
- Thouret, V., A. Marengo, P. Nédélec, C. Grouhel. „Ozone Climatologies at 9 - 12 km altitude as seen by the MOZAIC airborne program between september 1994 and August 1996.“ *Journal of Geophysical Research*, 20. October 1998: 25653 - 25679.
- Thouret, V., J.-P. Cammas, B. Sauvage, G. Athier, R. Zbinden, P. Nédélec, P. Simon, F. Karcher. „Tropopause referenced ozone climatology and inter-annual variability (1994 – 2003) from the MOZAIC programme.“ *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 2006: 1033 - 1051.
- Tie, X., Brasseur, G.P., Zhao, G., Granier, C., Massie, S., Quin, Y., Wang, P., Wang, G., Richter, A. „Chemical characterisation of air pollution in Eastern China and the Eastern United States“ *Atmospheric Environment*, Vol. 40, 2006:2607 - 2625
- Tuck, A.F., S.J. Hovde, K.K. Kelly, M.J. Mahoney, M.H. Proffitt, E.C. Richard, T.L. Thompson. „Exchange between the upper tropical troposphere and the lower stratosphere studied with aircraft observation .“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 108, No. D23, 4734, doi:10.1029/2003JD003399, 2003: ACH 7 – 1 - 16.
- Volz, A., D. Kley. „Evaluation of the Montsouris series of ozone measurements made in the nineteenth century.“ *Nature*, 332, 1988: 240 - 242.
- Volz-Thomas, A., H.-W. Pätz, N. Houben, S. Konrad, D. Mihelcic, T. Klüpfel, D. Perner. „Inorganic trace gases and peroxy radicals during BERLIOZ at Pabstthum: An investigation of the photostationary state of NO<sub>x</sub> and O<sub>3</sub>.“ *Journal of Geophysical Research*, Vol. 108, No. D4, 8248, doi:10.1029/2001JD001255, 2003.
- Volz-Thomas, A., M. Berg, T. Heil, N. Houben, A. Lerner, W. Petrick, D. Raak, H.-W. Pätz. „Measurements of total odd nitrogen (NO<sub>y</sub>) aboard MOZAIC in-service aircraft: instrument design, operation and performance.“ *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 2005: 583 - 595.
- Vrac, M., Hayhoe, K., Stein, M. „Identification and intermodel comparison of seasonal circulation patterns over North America.“ *International Journal of Climatology*, December 2007: 603 - 620.

## Literaturverzeichnis

Wang, Y., Logan, J.A., Jacob, D.J. Global simulation of tropospheric O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-hydrocarbon chemistry. 2. Model evaluation and global ozone budget, *of Geophysical Research*, Vol. 103, No. D9, 10727-10755 2003.

Warneck, P. „Fundamentals.“ In *Global Aspects of Atmospheric Chemistry*, von R. (Guest Editor) Zellner, 1 - 20. Darmstadt, New York: Steinkopff, Springer, 1999.

Weischet, W. *Einführung in die Allgemeine Klimatologie*. Stuttgart: Borntraeger, 2002.

Weischet, W. *Regionale Klimatologie Teil 1 Die Neue Welt*. Stuttgart: Teubner, 1996.

Weischet, W., Endlicher, W. *Regionale Klimatologie Teil 2 Die Alte Welt*. Stuttgart: Teubner, 2000.

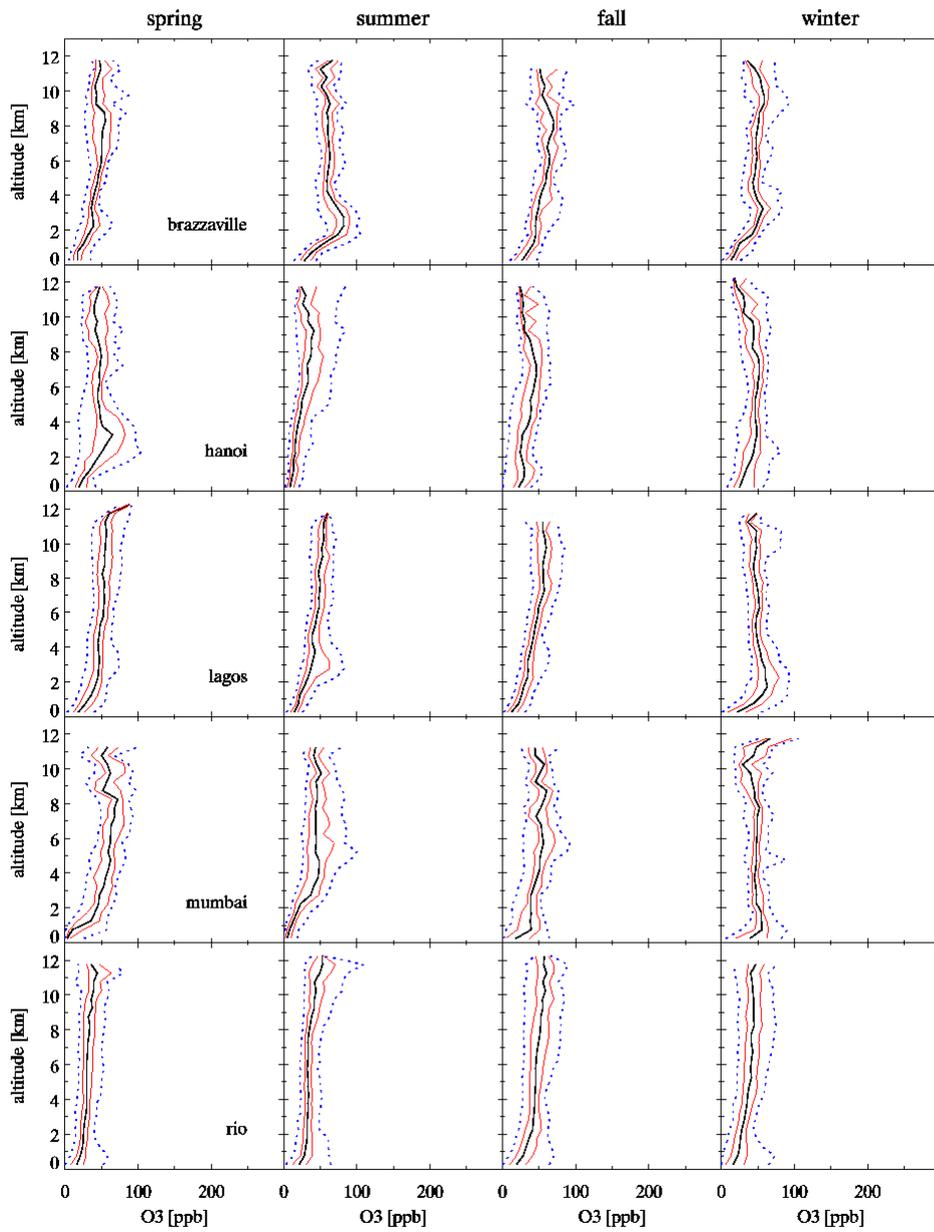
Yorks, J.E., Thompson, A.M., Joseph, E., Miller, S.K. "The variability of free tropospheric ozone over Beltsville, Maryland (39N, 77W) in the summers 2004 - 2007." *Atmospheric Environment*, Vol. 43, 11, 2009: 1827 - 1838

## ANHANG

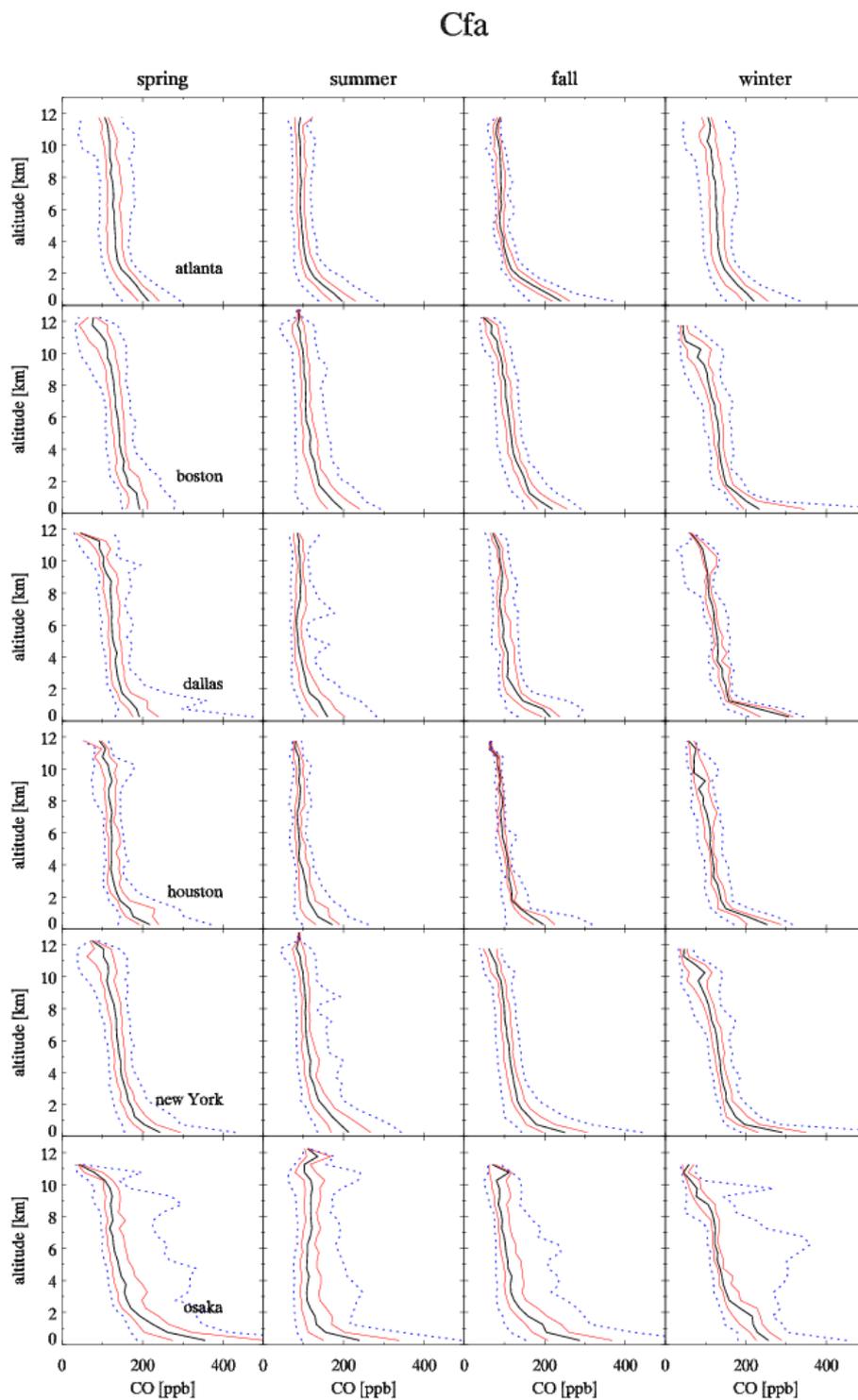
Tabelle A1 Charakteristika der Flughäfen

Flughafen	Windrosen 250m über Grund
Abu Dhabi	Frühjahr W,NW,SE, Sommer SE,NW (S), Herbst NW, Winter NW
Atlanta	ganzjährig E und W, W stärker
Bangkok	S im Frühjahr,SW im Sommer, NE im Herbst, N-E,S im Winter
Beijing	S und leicht N-Komponente im Frühjahr, S im Sommer, S und leicht NW im Herbst, NW im winter
Bogota	ganzjährig NW
Boston	Frühjahr SW und NW, Sommer SW, Herbst NW und SW, Winter NW
Brazzaville	ganzjährig NE und SW, im Sommer und Herbst sehr starke SW-Komponente, 1000m höher nur noch SW
Brussels	ganzjährig SW und leicht NE, im Winter E/NE-Komponente sehr schwach!
Cairo	Frühjahr SW,NE, Sommer NE,N, Herbst NE (N), Winter SW
Capetown	Frühjahr NW und SW, Summer NW und SE, Herbst S und ganz leichte NW-Komponente, Winter S und W
Caracas	ganzjährig E
Chennai	SW-S im Frühjahr,SW im Sommer und Herbst,NE (leichte SW-Komponente) im Winter
Chicago	W und slightly NE im Frühjahr, NE und SW im Sommer, homogen im Herbst, W im Winter
Cincinnati	Frühjahr N,SW, Sommer S-SW,N, Herbst inhomogen, N,W, Winter SW, SE,S
Cologne	ganzjährig SW und NE
Dallas	ganzjährig S und leicht N, im Herbst und Winter ausgeglichen
Delhi	ganzjährig SE (leichte NW-Komponente)
Detroit	Frühjahr SW,NE, Sommer SW,N, Herbst SW,W/NW, Winter SW,NE
Dubai	Frühjahr NW und leicht SE, Sommer SE und NW, Herbst und Winter
Frankfurt	ganzjährig SW und NE -Komponente
Hanoi	NE und SE im Frühjahr, SE im Sommer und Winter, NW im Herbst
Ho Chi Minh City	SE im Frühjahr und Winter, 90-270 im summer, slightly SW-Trend, Herbst:Stern
Hongkong	Sternförmig, Sommer E und S, Winter N und NE
Houston	ganzjährig SE und leicht NW außer Sommer
Johannesburg	SW und NW im Frühjahr und Herbst, NW im Sommer, Winter: Stern(W)
Kigali	Frühjahr NW, slightly NE, Sommer W/NW und SE, Herbst E/SE und NW, Winter SE und slightly NW
Kuwait	Frühjahr NW-N, Sommer NW, Herbst NE-E
Lagos	ganzjährig SW
Los Angeles	ganzjährig W/SW, Herbst fehlt
Male	Frühjahr W, Sommer W und S, SW, Herbst W, SW, Winter fehlt
Mexico	Frühjahr SW, Sommer NE, Herbst N und NE, Winter N und S
Miami	E-SE im Frühjahr, E (SE) im Sommer, E im Herbst und Winter
Montreal	NE und SE im Frühjahr, SW im Sommer, S-SW im Herbst, W im Winter
Mumbai	SW im Frühjahr und Sommer (Frühjahr leichte NW-Komponente), NE-E im Herbst und Winter
Munich	ganzjährig E und W, im Winter mehr West, Frühjahr, Sommer und Herbst leichter N-Peak
Nairobi	Frühjahr E/SE und leichte NE-Komponente, Sommer, NE, SW und SE, Herbst NE-E, Winter NE
New York	Frühjahr NW und SW, Sommer S-SW, Herbst NW und SW aber flacher als Frühjahr, Winter NW
Osaka	Frühling und Sommer SW und NE, Herbst NE, im Winter W-NW
Paris	ganzjährig SW und leicht SE, im Frühjahr ausgeglichen
Quito	S-SE ganzjährig, im Herbst und Winter leichte N-Komponente
Rio de Janeiro	SE im Frühjahr, NE im Sommer, SW im Herbst, SE und NW im Winter
San Francisco	ganzjährig W-NW, im Winter auch NE-SE
Sao Paulo	ganzjährig NE und leicht SE
Seoul	Frühjahr SW-NW, Sommer NW und E, Herbst NW, Winter NW
Shanghai	Frühjahr SE und NW, Sommer mainly SE (NW), Herbst NW (NE), Winter N (SE, NW, NE)
Teheran	ganzjährig SE und leicht NW
Tel Aviv	ganzjährig NW, im Herbst und Winter auch SE
Tokyo	Frühling, Sommer, Herbst NE und leicht SW und NW, im Winter NW
Toronto	ganzjährig SW-Komponente
Vancouver	ganzjährig E/SE und W/NW, im Herbst NW schwächer
Vienna	ganzjährig NW und SE-Komponente
Washington	Frühjahr S, Sommer S und N, leicht NW, NE, Herbst S und NW, Winter SW und NW
Windhoek	Frühjahr NE, leicht SW, Sommer NE, leicht NW, Herbst N und NE, Winter NE und SW

Af

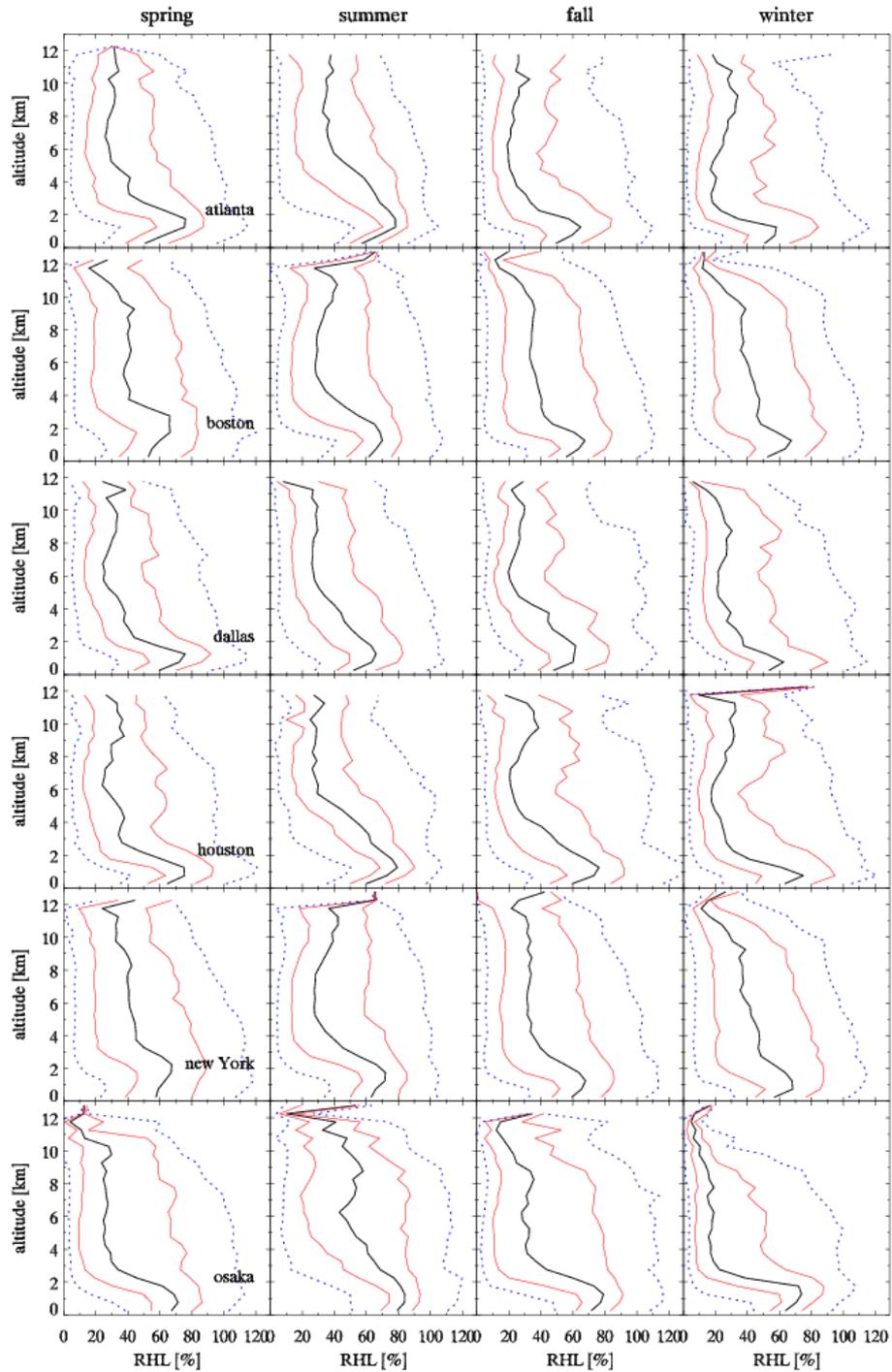


**Abbildung A1** Vertikalprofile für Ozon an den Flughäfen der Klimazone Af, schwarz: Median, rot 25% bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich



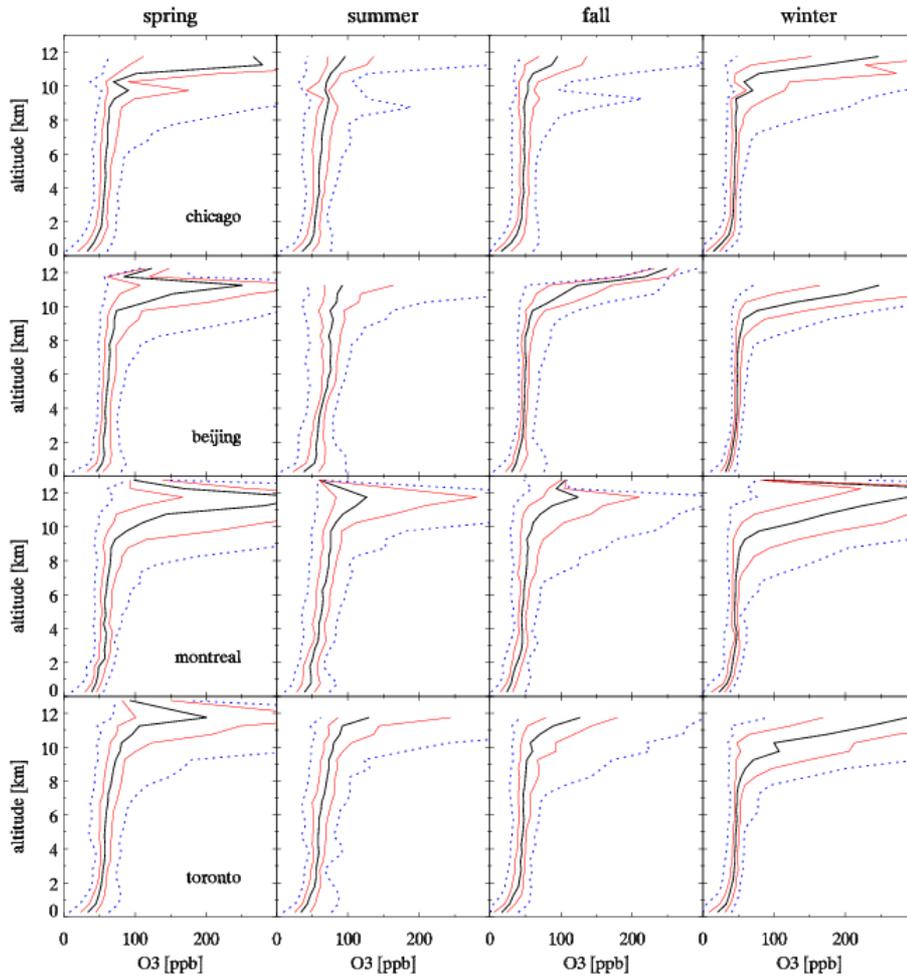
**Abbildung A2** Vertikalprofile von Kohlenmonoxid an den Flughäfen der Klimazone Cfa, schwarz: Median, rot 25% bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

Cfa

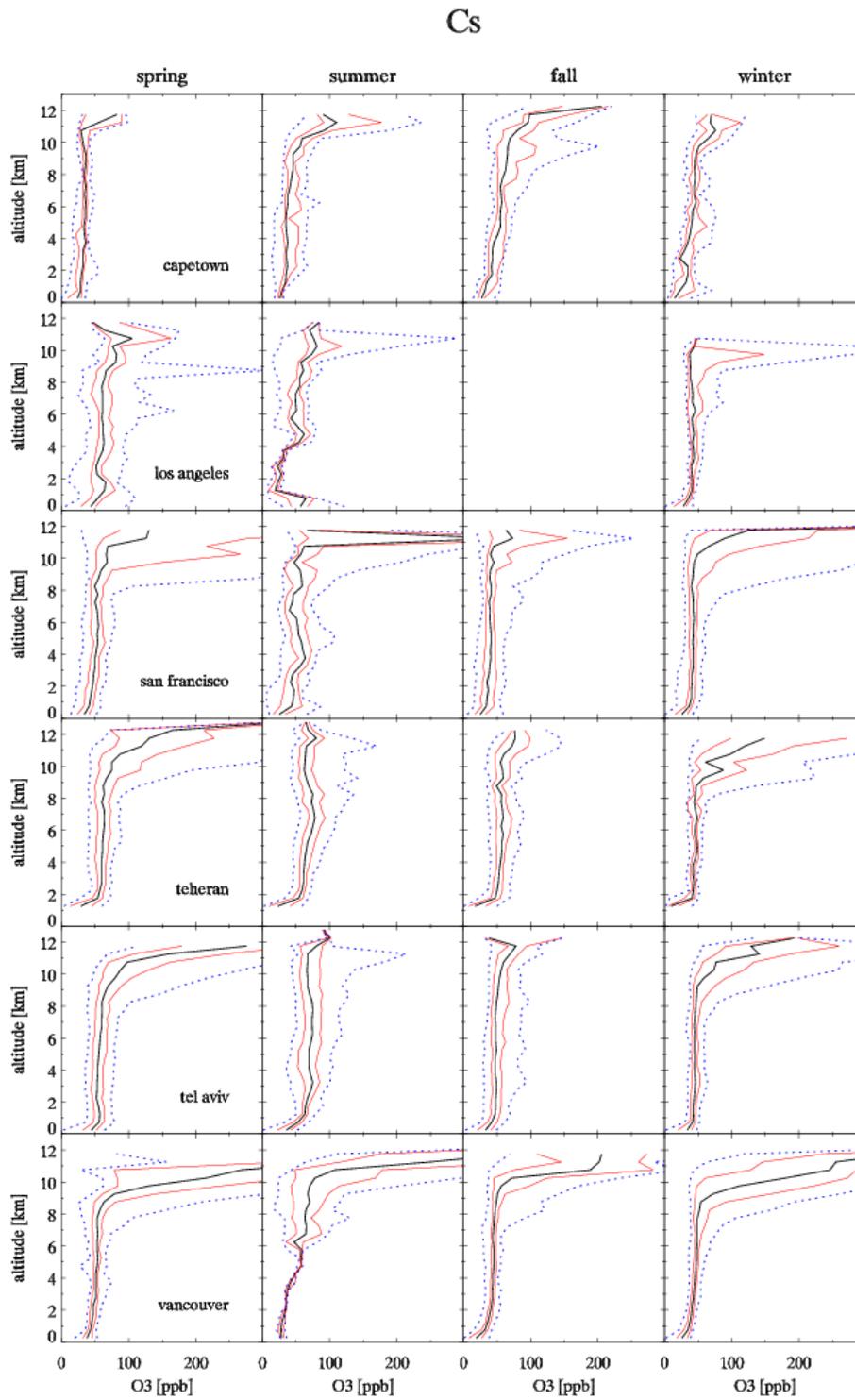


**Abbildung A3** Vertikalprofile der Relativen Feuchte an den Flughäfen der Klimazone Cfa, schwarz: Median, rot 25% bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

Df



**Abbildung A4** Vertikalprofile von Ozon an den Flughäfen der Klimazone Df, schwarz: Median, rot 25% bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich



**Abbildung A5** Vertikalprofile von Ozon an den Flughäfen der Klimazone Cs, schwarz: Median, rot 25% bzw. 75% Perzentile, blau 5 bzw. 95% Perzentile, freundliche Genehmigung durch Dr. K. Thomas, Forschungszentrum Jülich

Anhang

**Tabelle A2** z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach Vrac: HAC, Wetterlagen in Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

	vrac_hac_h2o				
	spring				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	3.1354	1.3761	0.99522	1.3255	2.6049
Z (WL1&3)	1.884	0.6634	0.73271	0.77777	1.2144
Z (WL1&4)	4.7395	2.4209	2.218	1.8158	3.4636
Z (WL2&3)	0.039248	0.13829	0.3192	0.014698	0.46357
Z (WL2&4)	3.0381	1.6885	2.0387	1.115	1.6604
Z (WL3&4)	1.556	1.0331	0.70851	0.72905	1.3897
	summer				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	1.7022	0.65557	0.46498	0.18869	0.21026
Z (WL1&3)	1.0944	0.15339	0.24886	0.80177	0.2852
Z (WL1&4)	1.7825	0.60086	0.78527	0.7223	0.17297
Z (WL2&3)	1.1989	1.2004	1.066	0.9278	0.75677
Z (WL2&4)	0.030221	0.27819	0.30588	0.66174	0.65921
Z (WL3&4)	1.2333	1.3446	1.7824	0.60752	0.31382
	fall				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	3.0883	2.5012	2.456	2.1508	2.4043
Z (WL1&3)	1.9955	1.3243	1.3481	1.0812	1.7783
Z (WL1&4)	5.2839	3.277	3.3208	2.8543	3.0456
Z (WL2&3)	1.2727	1.454	1.3255	1.1942	0.80961
Z (WL2&4)	3.2168	0.94915	1.141	0.96991	0.86368
Z (WL3&4)	4.1611	2.4996	2.4622	1.9849	1.5326
	winter				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	2.4976	2.3292	2.2666	2.0795	0.37625
Z (WL1&3)	0.79905	0.78214	0.53277	0.70926	0.22681
Z (WL1&4)	1.9961	2.0385	2.3079	1.3473	0.27645
Z (WL2&3)	3.058	2.7858	1.5495	1.0607	0.65976
Z (WL2&4)	0.16222	0.4178	0.6602	0.06092	0.10083
Z (WL3&4)	2.597	2.521	1.937	0.77194	0.41629

Anhang

**Tabelle A3** z-Werte Ozon USA-Ost nach Vrac: HAC, Wetterlagen in Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

	vrac_hac_o3				
	spring				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	3.2347	4.3649	3.3798	1.8793	1.0543
Z (WL1&3)	4.2718	3.3757	2.5012	0.23728	1.9119
Z (WL1&4)	4.4594	4.145	3.6273	2.4633	2.4875
Z (WL2&3)	2.6568	0.83107	0.60742	1.3754	1.6272
Z (WL2&4)	2.5527	0.69274	0.77993	1.0175	2.308
Z (WL3&4)	0.87343	0.22506	0.12548	1.8047	0.46991
	summer				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	0.839	1.0816	2.0356	1.7281	0.91112
Z (WL1&3)	0.86556	1.2527	1.8601	1.7956	1.1883
Z (WL1&4)	0.74049	0.9987	1.7753	2.1847	0.44256
Z (WL2&3)	0.52554	0.37467	0.40639	0.097923	0.79931
Z (WL2&4)	0.39954	0.39512	0.73285	0.11333	0.92378
Z (WL3&4)	0.83209	0.25895	0.36453	0.095653	1.9747
	fall				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	0.676	0.19209	0.94269	0.07884	0.78408
Z (WL1&3)	1.3861	1.7572	2.2362	1.6297	0.98428
Z (WL1&4)	2.9489	1.1347	0.14052	0.68851	0.79533
Z (WL2&3)	1.0728	1.986	2.1537	2.1795	2.3941
Z (WL2&4)	3.527	1.753	1.3914	0.92828	2.0259
Z (WL3&4)	2.2596	3.4298	3.1483	2.7589	0.50911
	winter				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	0.58278	1.5679	1.8891	1.8777	1.7195
Z (WL1&3)	1.2797	0.11547	0.94602	1.0037	0.38787
Z (WL1&4)	3.1797	0.75763	1.5468	1.5033	0.18849
Z (WL2&3)	0.60921	1.585	2.6299	2.5287	1.3462
Z (WL2&4)	2.3786	0.13657	0.53766	0.36187	0.94186
Z (WL3&4)	2.2076	0.72189	2.0058	2.1304	0.024203

Anhang

**Tabelle A4** z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach Vrac: EM, Wetterlagen in Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

	vrac_em_h2o				
	spring				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	2.0544	0.99424	0.82577	0.14239	1.2721
Z (WL1&3)	3.5876	1.8385	1.7908	1.3182	1.7591
Z (WL1&4)	3.2234	1.7108	1.4455	1.554	3.2278
Z (WL1&5)	3.3416	2.3866	2.1332	1.8045	2.0515
Z (WL2&3)	1.6843	1.086	1.0974	1.2153	2.7999
Z (WL2&4)	4.8096	2.3994	2.1603	1.7118	2.3381
Z (WL2&5)	4.3203	2.8301	2.6066	1.7809	1.0037
Z (WL3&4)	5.792	3.1263	2.8358	2.5379	4.3059
Z (WL3&5)	4.8931	3.4096	2.8308	2.3723	2.8538
Z (WL4&5)	0.9343	0.96449	0.68931	0.57828	0.89609
	summer				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	1.7379	0.50895	0.75926	0.45889	0.23378
Z (WL1&3)	0.69651	1.7492	1.8722	1.1069	2.4188
Z (WL1&4)	2.7918	1.8715	2.4628	2.315	2.9459
Z (WL1&5)	3.2532	3.0637	3.0042	2.8434	3.3982
Z (WL2&3)	1.6113	1.6013	1.7614	1.201	1.8415
Z (WL2&4)	3.0432	1.5412	1.8663	1.5188	1.6508
Z (WL2&5)	3.2287	2.0401	2.0472	1.7292	1.7419
Z (WL3&4)	1.0318	0.69597	0.5011	0.29695	0.73398
Z (WL3&5)	1.034	0.17049	0.37121	0.28866	0.53092
Z (WL4&5)	0.031371	1.0384	0.35181	0.33057	0.58746
	fall				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	1.5973	1.9784	1.9405	1.9942	3.2614
Z (WL1&3)	2.912	0.88503	0.66547	1.1522	0.087057
Z (WL1&4)	4.409	2.6005	2.226	2.4438	2.793
Z (WL1&5)	3.9243	3.7491	3.8106	3.3849	3.0533
Z (WL2&3)	3.6788	2.3729	2.2321	2.5073	2.5289
Z (WL2&4)	2.9391	0.97019	0.44373	0.48876	0.023464
Z (WL2&5)	2.9099	2.4315	2.4267	2.0137	0.54109
Z (WL3&4)	5.5528	2.8055	2.3681	3.0552	2.1636
Z (WL3&5)	4.6016	3.8669	3.9255	3.9196	2.5915
Z (WL4&5)	0.45775	1.4414	1.905	1.7954	0.59419
	winter				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	1.932	1.2616	0.56378	0.69429	0.2868
Z (WL1&3)	0.30101	0.60762	1.0976	0.61968	1.8507
Z (WL1&4)	2.2302	1.9052	0.92536	1.5512	0.79049
Z (WL1&5)	1.2511	1.0709	0.94491	1.0941	1.0897
Z (WL2&3)	2.5034	1.1167	2.0682	1.7674	2.0658
Z (WL2&4)	1.5022	1.3745	0.54306	1.13	0.93958
Z (WL2&5)	1.0362	0.76642	0.5121	0.8367	1.1325
Z (WL3&4)	2.1447	1.6535	1.1177	1.4691	1.6496
Z (WL3&5)	1.1877	0.89428	0.72018	0.96126	1.3857
Z (WL4&5)	0.29277	0.29277	0.29277	0.29277	1

Anhang

**Tabelle A5** z-Werte Ozon USA-Ost nach Vrac: EM, Wetterlagen in Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

	vrac_em_o3				
	spring				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	0.89045	1.585	0.44789	0.96417	2.3414
Z (WL1&3)	2.7894	3.7422	3.1209	2.9647	0.12867
Z (WL1&4)	2.8277	2.1484	1.2549	0.022049	3.0866
Z (WL1&5)	2.1325	1.2119	1.7558	0.86951	1.1785
Z (WL2&3)	2.1624	2.3039	2.5187	1.8516	2.0087
Z (WL2&4)	3.8261	3.2765	1.4947	0.75435	1.1827
Z (WL2&5)	2.8747	2.1122	1.8553	1.2844	0.60945
Z (WL3&4)	6.015	5.1334	3.8059	2.5415	2.5331
Z (WL3&5)	4.5215	3.4623	3.5951	2.6112	0.97144
Z (WL4&5)	0.078266	0.58351	0.92987	0.76332	1.4847
	summer				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	0.22527	0.4018	0.3362	0.6478	0.61835
Z (WL1&3)	0.58777	0.26875	1.2766	1.0347	1.1444
Z (WL1&4)	0.33826	0.50175	0.21607	0.30009	0.29158
Z (WL1&5)	0.3246	1.8538	1.0533	0.90484	0.36317
Z (WL2&3)	0.73241	0.24019	0.64051	0.32026	0.28022
Z (WL2&4)	0.074605	0.62553	0.22955	0.36155	0.93002
Z (WL2&5)	0.066693	1.3869	0.24849	0.10168	0.57502
Z (WL3&4)	0.98725	0.30389	1.1206	0.95917	1.408
Z (WL3&5)	1.0916	0.99009	0.7975	0.87636	0.91817
Z (WL4&5)	0.18877	1.3222	0.83828	0.49858	0.88629
	fall				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	1.6101	0.99685	0.14009	0.30194	2.3397
Z (WL1&3)	4.403	2.8099	1.8607	1.784	1.1195
Z (WL1&4)	1.8751	2.2342	2.2612	2.1229	0.13679
Z (WL1&5)	0.84079	0.66294	0.92157	2.0667	0.8009
Z (WL2&3)	2.3421	1.4673	1.731	2.0977	0.79706
Z (WL2&4)	2.8526	2.6514	2.2789	1.889	1.8552
Z (WL2&5)	1.8297	1.1776	0.85473	1.8306	2.2435
Z (WL3&4)	4.9035	4.2059	3.3459	3.2207	0.99047
Z (WL3&5)	3.7439	2.3275	2.0257	3.2105	1.2298
Z (WL4&5)	0.53821	0.99326	0.66079	0.19117	0.87532
	winter				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	0.21897	0.26872	0.25981	0.51145	0.45272
Z (WL1&3)	0.45199	1.6301	0.67107	0.021889	1.1307
Z (WL1&4)	0.027217	0.62853	0.8425	1.3055	1.2108
Z (WL1&5)	0.81892	0.092803	0.030934	0.50775	0.87988
Z (WL2&3)	0.3166	2.1681	1.2075	0.88562	2.1834
Z (WL2&4)	0.15364	0.74814	0.61068	0.92335	1.1127
Z (WL2&5)	0.80528	0.10636	0.13439	0.66055	0.81977
Z (WL3&4)	0.045088	0.0080279	1.0568	1.4189	1.6676
Z (WL3&5)	0.98182	0.58038	0.035898	0.7589	1.0376
Z (WL4&5)	0.87831	0.87831	0.29277	1.4639	0

## Anhang

**Tabelle A6** z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach Vrac: EM, Wetterlagen und Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

vrac em h2o					
H2O	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
1&2	3.0536	0.88584	0.95448	0.65539	0.2205
1&3	8.0126	4.1476	4.6039	4.5321	5.3411
1&4	9.254	5.9313	5.6579	5.6324	7.0352
1&5	14.751	11.863	11.143	10.309	12.254
2&3	5.0386	3.2329	3.609	3.6664	4.8506
2&4	11.123	6.5247	6.0557	5.6626	6.7855
2&5	16.234	12.267	11.34	9.9747	11.735
3&4	13.83	8.9316	8.7232	8.8883	10.607
3&5	18.477	14.818	14.108	13.448	15.72
4&5	4.1822	4.6188	4.1251	3.6629	4.2559
Z (Spring&Summer)	16.722	12.814	12.234	11.494	16.9
Z (Spring&Fall)	3.8552	1.8836	2.6203	3.3975	7.769
Z (Spring&Winter)	9.3303	7.1322	6.496	5.7529	4.3568
Z (Summer&Fall)	15.266	10.676	9.8121	8.4802	9.7913
Z (Summer&Winter)	22.033	17.797	17.212	16.399	20.109
Z (Fall&Winter)	13.788	8.5843	8.9252	9.1306	12.056

**Tabelle A7** z-Werte Ozon USA-Ost nach Vrac: EM, Wetterlagen und Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

vrac_em_o3					
O3	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
1&2	4.0899	2.4016	1.9089	1.9371	2.2813
1&3	8.1008	6.7762	5.9392	5.2853	1.1762
1&4	6.1783	5.2502	5.7089	5.3513	0.0035618
1&5	8.6738	5.6476	8.2171	8.9982	1.6551
2&3	3.5369	4.2694	3.9293	3.3034	3.2635
2&4	9.3056	6.9477	7.0331	6.9796	2.1108
2&5	11.981	7.8288	9.6897	10.799	4.0833
3&4	12.775	10.371	10.482	10.062	1.1673
3&5	15.87	12.124	13.918	14.272	0.39771
4&5	1.8878	0.72937	1.2271	2.606	1.9498
Z (Spring&Summer)	7.2944	0.98017	0.47091	3.0333	6.8261
Z (Spring&Fall)	9.1493	15.101	16.725	16.04	14.601
Z (Spring&Winter)	18.206	18.197	18.441	17.84	6.8271
Z (Summer&Fall)	13.864	14.102	17.46	18.096	12.236
Z (Summer&Winter)	20.39	17.157	19.009	19.116	1.4819
Z (Fall&Winter)	8.9596	4.939	4.3081	4.5843	6.4861

## Anhang

**Tabelle A8** z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach Vrac: HAC, Wetterlagen und Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

vrac hac h2o	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	8.8757	6.6983	6.1557	5.9596	6.3717
Z (WL1&3)	6.6231	4.0739	4.5852	4.5459	5.9791
Z (WL1&4)	14.306	10.873	10.867	9.4708	10.815
Z (WL2&3)	0.92996	1.8667	0.93224	0.69036	0.48965
Z (WL2&4)	8.3361	5.547	6.2284	4.8102	6.0503
Z (WL3&4)	7.4491	6.2437	6.1005	4.6334	4.6065
Z (Spring&Summer)	16.722	12.814	12.234	11.494	16.9
Z (Spring&Fall)	3.8552	1.8836	2.6203	3.3975	7.769
Z (Spring&Winter)	9.3303	7.1322	6.496	5.7529	4.3568
Z (Summer&Fall)	15.266	10.676	9.8121	8.4802	9.7913
Z (Summer&Winter)	22.033	17.797	17.212	16.399	20.109
Z (Fall&Winter)	13.788	8.5843	8.9252	9.1306	12.056

**Tabelle A9** z-Werte Ozon USA-Ost nach Vrac: HAC, Wetterlagen und Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

vrac hac_o3	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	7.0951	6.3274	5.8101	5.3613	1.1209
Z (WL1&3)	6.1663	2.1128	1.0267	0.90236	2.5223
Z (WL1&4)	11.893	8.6641	9.032	8.6891	0.65006
Z (WL2&3)	0.43431	4.0135	4.4342	4.2122	4.5727
Z (WL2&4)	6.9863	3.6379	4.5508	4.5936	2.2343
Z (WL3&4)	5.2069	6.6778	7.6504	7.6249	2.7025
Z (Spring&Summer)	7.2944	0.98017	0.47091	3.0333	6.8261
Z (Spring&Fall)	9.1493	15.101	16.725	16.04	14.601
Z (Spring&Winter)	18.206	18.197	18.441	17.84	6.8271
Z (Summer&Fall)	13.864	14.102	17.46	18.096	12.236
Z (Summer&Winter)	20.39	17.157	19.009	19.116	1.4819
Z (Fall&Winter)	8.9596	4.939	4.3081	4.5843	6.4861

Anhang

**Tabelle A10** z-Werte Wasserdampfmischungsverhältnis USA-Ost nach SOM, Wetterlagen in Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_\alpha$ , grau:  $z < z_\alpha$

	sauter_6J_h2o				
	spring				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	4.059	1.5585	1.2171	1.7693	2.5449
Z (WL1&3)	2.8006	2.3387	1.4896	1.3238	1.9762
Z (WL1&4)	2.9109	1.1262	0.48793	0.47866	1.6409
Z (WL1&5)	1.3923	0.47558	0.022406	0.3437	1.4394
Z (WL1&6)	4.039	4.613	4.2563	3.2536	3.444
Z (WL2&3)	0.31164	1.284	0.57943	0.023954	0.1164
Z (WL2&4)	0.70352	0.1544	0.60769	1.024	0.37084
Z (WL2&5)	1.1462	0.30962	0.71843	0.90208	0.41208
Z (WL2&6)	3.1199	4.3109	4.1736	2.9766	2.4574
Z (WL3&4)	0.47265	1.1323	0.91038	0.71673	0.30237
Z (WL3&5)	0.98527	1.2063	1.0267	0.89452	0.19708
Z (WL3&6)	2.566	3.1571	3.4424	2.5835	2.3978
Z (WL4&5)	0.67572	0.28768	0.34691	0.32546	0.077674
Z (WL4&6)	2.7804	3.6141	3.8094	2.9265	2.5172
Z (WL5&6)	2.9019	3.4996	3.5314	2.7538	2.3277
	summer				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	1.9725	1.0797	1.8462	1.3793	3.0282
Z (WL1&3)	1.8855	2.584	2.0186	0.67724	0.001345
Z (WL1&4)	0.52554	0.62324	0.36752	0.64891	1.3277
Z (WL1&5)	1.4743	1.5161	1.6114	1.6114	1.1806
Z (WL1&6)	0.44791	0.010518	0.17619	0.90166	0.535
Z (WL2&3)	1.1402	0.30499	0.7655	1.0402	2.7416
Z (WL2&4)	0.98473	0.19695	0.86164	1.2309	2.8314
Z (WL2&5)	1.2484	0.25306	0.80442	0.5475	2.2821
Z (WL2&6)	1.45	0.5	0.7	1.35	1.7
Z (WL3&4)	0.24011	0.364	0.40769	0.91669	1.1895
Z (WL3&5)	0.28952	0.92854	0.16836	1.0354	1.1137
Z (WL3&6)	1.0418	0.70509	0.40042	1.0122	0.38616
Z (WL4&5)	0.15542	0.0074848	0.19283	1.2756	1.8335
Z (WL4&6)	0.8	0.46667	0.26667	0.46667	0.12726
Z (WL5&6)	0.9671	0.41015	0.37914	1.2593	0.89505
	fall				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	3.7002	2.7585	2.3695	2.3033	1.2001
Z (WL1&3)	0.82554	1.6552	0.92858	0.54085	1.3053
Z (WL1&4)	1.9355	1.737	1.1298	1.505	2.6747
Z (WL1&5)	3.4525	2.3127	1.4809	0.49378	1.2663
Z (WL1&6)	6.3952	4.4288	4.9191	3.9381	4.5736
Z (WL2&3)	2.8555	1.3321	1.6535	1.8854	0.17138
Z (WL2&4)	0.99246	0.8199	0.83645	0.49134	1.4328
Z (WL2&5)	0.47818	0.78275	1.1221	1.6468	0.088346
Z (WL2&6)	3.5483	2.0121	2.7066	1.8449	2.9285
Z (WL3&4)	1.2761	0.32615	0.29257	0.98233	1.6718
Z (WL3&5)	2.5187	0.69621	0.62017	0.034317	0.018744
Z (WL3&6)	5.8738	3.2899	4.4995	3.6441	3.6095
Z (WL4&5)	0.72603	0.29534	0.096271	1.072	1.6903
Z (WL4&6)	3.8961	2.753	3.8626	2.3916	1.9204
Z (WL5&6)	4.2786	2.9849	3.9651	3.4611	3.6664
	winter				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	0.67791	1.113	0.51197	0.81151	0.79766
Z (WL1&3)	2.9202	0.14869	1.1108	0.28143	0.55163
Z (WL1&4)	1.0623	0.49338	0.28524	0.019479	0.20946
Z (WL1&5)	0.91785	0.85071	0.81467	0.027437	0.09347
Z (WL1&6)	2.7855	2.3756	3.1284	2.5715	1.2495
Z (WL2&3)	2.0983	1.2417	1.5429	0.58966	1.6478
Z (WL2&4)	0.18544	1.1659	0.96562	1.1999	1.401
Z (WL2&5)	1.7109	2.3468	1.3395	1.0627	1.3305
Z (WL2&6)	4.058	4.2012	4.2169	4.4694	2.8826
Z (WL3&4)	1.9127	0.75842	0.96189	0.37118	0.65567
Z (WL3&5)	3.8982	0.99428	0.58306	0.37502	0.46026
Z (WL3&6)	5.2873	3.1936	2.7301	3.3269	0.52685
Z (WL4&5)	2.1734	1.7399	0.60797	0.011052	0.066227
Z (WL4&6)	4.328	4.2345	4.4138	4.3415	1.9409
Z (WL5&6)	2.697	2.4499	3.9645	4.1821	1.9566

Anhang

**Tabelle A11** z-Werte Ozon USA-Ost nach SOM, Wetterlagen in Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

	sauter_6j_o3				
	spring				
	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	3.1968	1.6044	1.3782	0.67666	2.6326
Z (WL1&3)	1.9504	1.5611	1.7439	0.9072	1.2892
Z (WL1&4)	4.0916	3.6355	3.1927	2.2254	0.96559
Z (WL1&5)	0.33506	1.3695	1.3907	1.7048	0.52675
Z (WL1&6)	2.2966	2.4665	2.6781	1.7285	2.4496
Z (WL2&3)	1.2528	0.20759	0.71175	0.30546	0.79082
Z (WL2&4)	1.8735	2.5154	2.0254	1.6481	1.3084
Z (WL2&5)	2.3439	0.35079	0.42136	1.3583	1.8482
Z (WL2&6)	1.0818	1.8976	2.0267	1.4984	1.7753
Z (WL3&4)	2.8077	2.169	0.97577	1.0996	0.37525
Z (WL3&5)	1.307	0.05914	0.02957	0.92998	1.131
Z (WL3&6)	1.7325	2.0725	1.7315	1.1112	1.8897
Z (WL4&5)	3.267	1.4846	0.84953	0.28802	0.9748
Z (WL4&6)	0.128	0.79363	0.73258	0.87083	2.1707
Z (WL5&6)	2.4333	1.4	1.0923	0.67337	2.4089
	summer				
	o3	o3	o3	o3	o3
Z (WL1&2)	0.78529	0.26514	0.3116	0.19082	0.17034
Z (WL1&3)	0.45543	0.95102	2.3311	1.9742	2.093
Z (WL1&4)	0.38675	1.1997	1.063	1.4969	0.50343
Z (WL1&5)	1.7603	0.21789	1.3534	0.70829	2.4372
Z (WL1&6)	1.0732	0.82657	0.25769	1.4725	0.51443
Z (WL2&3)	1.1371	0.3081	0.99495	0.82932	1.0976
Z (WL2&4)	0.22156	1.2309	0.83702	1.2063	0.24879
Z (WL2&5)	2.0582	0.32404	0.28445	0.19575	1.3526
Z (WL2&6)	2	1.2	0.25	1.35	0.4
Z (WL3&4)	0.57513	1.5883	2.0502	2.3383	0.6976
Z (WL3&5)	1.4659	0.96045	0.88705	1.0913	0.32833
Z (WL3&6)	1.2579	1.1485	0.9205	1.956	1.0475
Z (WL4&5)	1.1931	1.3435	1.7948	1.78	1.0077
Z (WL4&6)	1.0667	0.26667	0.2	0.33333	0.69991
Z (WL5&6)	0.87298	1.1484	0.60933	1.6926	1.0925
	fall				
	o3	o3	o3	o3	o3
Z (WL1&2)	4.007	1.2712	0.34848	0.66902	1.2956
Z (WL1&3)	1.5475	0.11206	1.3284	1.7668	0.51936
Z (WL1&4)	1.8638	1.1813	1.9355	3.4873	0.46446
Z (WL1&5)	3.2393	2.3153	3.0618	3.3633	1.5398
Z (WL1&6)	5.5294	3.118	2.9392	3.094	0.31918
Z (WL2&3)	2.9519	1.103	2.0206	2.37	0.80312
Z (WL2&4)	1.5059	2.4673	2.5966	4.141	1.4836
Z (WL2&5)	1.5189	4.1597	3.6915	3.9852	2.6091
Z (WL2&6)	2.184	4.8266	3.7405	3.6863	0.86726
Z (WL3&4)	0.84642	1.5252	1.0744	2.274	0.83373
Z (WL3&5)	1.9004	2.8145	1.9338	1.7865	2.1673
Z (WL3&6)	4.8087	3.5687	1.9373	1.7328	0.18795
Z (WL4&5)	0.2876	0.54427	0.31145	0.67497	0.80681
Z (WL4&6)	3.2921	1.5763	0.41996	0.72459	0.54374
Z (WL5&6)	3.7035	1.4926	0.13421	0.038655	1.4643
	winter				
	o3	o3	o3	o3	o3
Z (WL1&2)	2.3423	0.11128	0.52604	0.71273	0.34559
Z (WL1&3)	1.495	0.50814	0.085994	0.66576	0.81591
Z (WL1&4)	2.2265	0.88592	1.2347	0.99897	1.2917
Z (WL1&5)	1.5439	0.72708	1.3082	1.3988	1.6269
Z (WL1&6)	3.2282	1.0821	1.146	1.0639	0.1416
Z (WL2&3)	0.53555	0.64696	0.54574	0.047405	0.57097
Z (WL2&4)	0.61159	1.0012	1.0595	0.56642	1.5988
Z (WL2&5)	1.0823	0.87649	1.1383	1.2615	1.8781
Z (WL2&6)	0.036426	1.294	1.0045	0.79935	0.25354
Z (WL3&4)	0.17442	1.6896	1.6646	0.36126	0.89419
Z (WL3&5)	0.30815	1.5639	1.7048	0.91451	1.0491
Z (WL3&6)	0.5885	1.8877	1.6151	0.51272	0.89637
Z (WL4&5)	0.68485	0.11347	0.25579	1.0592	0.097763
Z (WL4&6)	0.84313	0.43288	0.27717	0.19064	2.2213
Z (WL5&6)	1.8033	0.44107	0.5618	0.86636	2.2185

Anhang

**Tabelle A12** z-Werte Ozon USA-Ost nach SOM, Wetterlagen in Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

sauter 94-99 h2o	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	9.4394	6.4249	6.2148	5.7247	6.8783
Z (WL1&3)	0.77198	2.7498	1.8017	0.51978	0.23466
Z (WL1&4)	8.8955	6.9728	6.3014	5.6766	7.9625
Z (WL1&5)	4.9748	4.1791	3.2598	2.3377	2.694
Z (WL1&6)	13.054	11.434	11.88	10.559	10.458
Z (WL2&3)	8.8233	3.7535	4.4914	5.3768	6.427
Z (WL2&4)	0.34785	1.0914	0.38507	0.17822	1.2557
Z (WL2&5)	4.0284	1.9907	2.8503	3.3437	4.228
Z (WL2&6)	7.8438	7.2559	7.5275	6.3441	4.8373
Z (WL3&4)	8.339	4.5447	4.5938	5.3908	7.444
Z (WL3&5)	4.3447	1.6129	1.515	1.9588	2.3948
Z (WL3&6)	12.75	9.6977	10.686	10.398	10.014
Z (WL4&5)	4.0416	2.8803	3.0157	3.3797	5.3287
Z (WL4&6)	6.533	6.1314	7.0943	5.9951	3.7013
Z (WL5&6)	9.7452	8.4625	9.5194	8.8045	8.3346
Z (Spring&Summer)	16.722	12.814	12.234	11.494	16.9
Z (Spring&Fall)	3.8552	1.8836	2.6203	3.3975	7.769
Z (Spring&Winter)	9.3303	7.1322	6.496	5.7529	4.3568
Z (Summer&Fall)	15.266	10.676	9.8121	8.4802	9.7913
Z (Summer&Winter)	22.033	17.797	17.212	16.399	20.109
Z (Fall&Winter)	13.788	8.5843	8.9252	9.1306	12.056

**Tabelle A13** z-Werte Ozon USA-Ost nach SOM, Wetterlagen in Jahreszeiten. Weiß:  $z > z_{\alpha}$ , grau:  $z < z_{\alpha}$

sauter 94-99	500	2500-3000	3000-4500	4500-6000	8000-10000
Z (WL1&2)	6.9156	1.8819	3.117	3.1649	2.6236
Z (WL1&3)	1.4257	1.9337	3.4522	2.9136	1.022
Z (WL1&4)	8.3904	6.033	6.9696	7.1774	1.269
Z (WL1&5)	4.2762	5.5329	6.8778	6.4823	4.0497
Z (WL1&6)	12.116	9.8471	11.117	10.394	0.27658
Z (WL2&3)	5.8413	0.088194	0.16922	0.34068	3.5006
Z (WL2&4)	2.2668	4.8068	4.4518	4.5209	3.174
Z (WL2&5)	2.3699	3.8761	3.9783	3.5915	5.9758
Z (WL2&6)	7.3003	9.1959	8.9706	8.2121	1.8554
Z (WL3&4)	7.4088	4.8234	4.4592	4.6699	0.60306
Z (WL3&5)	3.0547	4.0023	3.9909	3.8635	3.2152
Z (WL3&6)	11.354	9.1324	9.1058	8.1965	0.92291
Z (WL4&5)	4.1779	1.1654	0.63519	0.82355	2.1322
Z (WL4&6)	5.1248	4.4909	3.9237	3.6624	0.84077
Z (WL5&6)	8.5946	5.7978	4.9092	4.3905	3.1354
Z (Spring&Summer)	7.2944	0.98017	0.47091	3.0333	6.8261
Z (Spring&Fall)	9.1493	15.101	16.725	16.04	14.601
Z (Spring&Winter)	18.206	18.197	18.441	17.84	6.8271
Z (Summer&Fall)	13.864	14.102	17.46	18.096	12.236
Z (Summer&Winter)	20.39	17.157	19.009	19.116	1.4819
Z (Fall&Winter)	8.9596	4.939	4.3081	4.5843	6.4861



Anhang

**Tabelle A15** Test der Verteilungen in Wetterlagen und Jahreszeiten auf Normalverteilung, Washington

Washington_500							
	mSAP_AC	mMO3CNR	mSH2OFZ	mMCOCNF	mSAT_AC	mRHL_FZ	mMNOYFZ
spring	0	0	0	0	0	1	
summer	0	0	0	0	0	0	
fall	0	0	0	0	0	0	
winter	0	0	1	0	0	0	
W1	0	1	0	0	0	0	
W2	0	0	0	0	0	0	
W3	0	0	0	0	1	0	
W4	0	0	0	0	0	1	
W5	0	0	1	0	0	0	
W6	0	0	0	0	1	0	
Washington_2500-300							
spring	0	0	0	0	0	0	0
summer	0	0	0	0	1	1	0
fall	0	0	0	0	0	0	0
winter	0	0	0	0	0	1	0
W1	0	0	0	0	0	0	0
W2	0	0	0	0	0	0	0
W3	0	0	0	0	0	0	0
W4	0	0	0	0	0	0	0
W5	0	0	0	0	0	0	0
W6	0	0	0	0	1	0	0
Washington_3000-4500							
spring	0	0	0	0	0	0	0
summer	1	0	1	0	0	1	0
fall	1	0	1	0	1	0	0
winter	1	0	0	0	0	0	0
W1	0	0	0	0	0	0	0
W2	0	0	0	0	0	0	0
W3	0	0	1	0	0	1	0
W4	0	0	0	0	0	0	0
W5	1	1	0	0	0	0	0
W6	1	0	1	0	1	1	0
Washington_4500-6000							
spring	1	0	0	0	0	1	0
summer	1	0	1	0	0	1	0
fall	1	1	1	0	0	1	0
winter	1	0	0	0	1	0	0
W1	1	0	0	0	0	0	0
W2	0	0	0	0	0	0	0
W3	1	0	1	0	1	1	0
W4	1	0	0	0	0	0	0
W5	0	0	0	0	0	0	0
W6	1	0	1	0	1	1	0
Washington_8000-10000							
spring	1	1	0	0	0	0	0
summer	1	1	0	0	0	0	0
fall	1	1	1	0	0	1	0
winter	1	1	0	0	0	0	0
W1	1	1	1	0	0	0	0
W2	1	0	1	0	0	1	0
W3	1	1	1	0	0	0	0
W4	1	1	0	0	0	1	0
W5	1	1	1	0	0	0	0
W6	1	1	1	0	0	1	0
0 = normalverteilt							
1 = nicht normalverteilt							

Anhang

**Tabelle A16** Test der Verteilungen in Wetterlagen und Jahreszeiten auf Normalverteilung, New York

New York 500							
	mSAP_AC	mMO3CNF	mSH2OFZ	mMCOCNF	mSAT_AC	mRHL_FZ	mMNOVFZ
spring	1	0	1	1	0	0	
summer	1	1	0	0	0	1	
fall	1	1	1	0	1	1	
winter	1	0	1	0	0	1	
W1	1	0	1	1	0	0	
W2	1	1	1	0	0	0	
W3	1	1	0	0	1	0	
W4	1	1	1	1	1	1	
W5	0	0	1	0	0	0	
W6	1	1	0	0	1	1	
New York 2500-300							
spring	1	0	1	0	1	0	0
summer	0	0	0	0	1	0	0
fall	0	0	1	0	1	1	0
winter	0	0	1	0	0	1	1
W1	0	0	1	0	1	0	0
W2	0	0	1	0	0	1	0
W3	0	0	1	0	1	1	0
W4	0	0	1	0	0	1	1
W5	0	0	1	0	0	1	0
W6	0	0	0	0	1	0	0
New York 3000-4500							
spring	1	1	1	0	1	0	0
summer	1	0	1	0	1	1	0
fall	1	1	1	1	1	1	0
winter	1	0	1	0	0	1	0
W1	1	0	1	0	1	0	0
W2	1	1	1	0	1	0	0
W3	1	0	1	0	1	1	0
W4	1	1	1	0	0	1	0
W5	1	0	1	0	0	0	0
W6	1	0	1	0	1	1	0
New York 4500-6000							
spring	1	1	1	0	1	1	0
summer	1	1	1	0	1	1	0
fall	1	0	1	0	1	1	0
winter	1	1	1	0	0	1	0
W1	1	0	1	0	1	1	0
W2	1	1	1	0	0	1	0
W3	1	0	1	0	1	1	0
W4	1	1	1	0	1	1	0
W5	1	1	1	0	0	1	0
W6	1	0	1	0	1	1	0
New York 8000-10000							
spring	1	1	1	0	0	0	0
summer	1	1	1	1	0	1	1
fall	1	1	1	0	0	1	0
winter	1	1	1	0	0	1	0
W1	1	1	1	0	0	1	0
W2	1	1	1	0	0	0	0
W3	1	1	1	1	0	1	0
W4	1	1	1	0	0	1	0
W5	1	1	1	0	0	1	0
W6	1	1	1	0	1	1	0
0 = normalverteilt							
1 = nicht normalverteilt							

Anhang

**Tabelle A17** Test der Verteilungen in Wetterlagen und Jahreszeiten auf Normalverteilung, USA-Ost

USA-East 500	mSAP_AC	mMO3CN	mSH2OFZ	mMCOCN	mSAT_AC	mRHL_FZ	mMNOYFZ
spring	1	1	1	0	1	1	
summer	1	1	1	1	0	1	
fall	1	1	1	1	1	1	
winter	1	0	1	0	1	1	
W1	1	0	1	1	1	1	
W2	1	1	1	0	0	0	
W3	1	0	1	1	1	1	
W4	0	1	1	0	1	1	
W5	0	1	1	0	0	0	
W6	1	1	1	1	1	1	
USA-East 2500-300							
spring	1	0	1	0	1	1	1
summer	1	0	0	1	1	0	1
fall	1	0	1	1	1	0	0
winter	1	1	1	1	1	1	1
W1	0	0	1	0	1	0	0
W2	0	0	1	0	0	1	0
W3	1	0	1	0	1	1	0
W4	1	0	1	0	0	1	0
W5	0	0	1	0	1	1	0
W6	1	1	1	0	1	0	1
USA-East 3000-4500							
spring	1	0	1	0	1	1	0
summer	1	0	0	1	1	0	1
fall	1	1	1	0	1	1	0
winter	1	0	1	0	1	1	1
W1	1	0	1	0	1	1	1
W2	1	1	1	0	1	1	0
W3	1	0	1	0	1	1	0
W4	1	1	1	1	0	1	0
W5	1	0	1	0	1	1	1
W6	1	0	1	0	1	0	0
USA-East 4500-6000							
spring	1	1	1	0	1	1	1
summer	1	1	1	1	1	1	1
fall	1	1	1	0	1	1	0
winter	1	1	1	0	1	1	1
W1	1	1	1	0	1	1	0
W2	1	1	1	0	0	1	0
W3	1	1	1	1	1	1	0
W4	1	1	1	0	0	1	0
W5	1	1	1	0	0	1	0
W6	0	1	1	0	1	1	0
USA-East 8000-10000							
spring	1	1	1	1	0	0	0
summer	1	1	1	1	0	1	1
fall	1	1	1	0	0	1	0
winter	1	1	1	0	0	1	1
W1	1	1	1	0	1	0	1
W2	1	1	1	0	1	1	0
W3	1	1	1	1	0	0	1
W4	1	1	1	0	1	1	0
W5	1	1	1	0	0	0	0
W6	1	1	1	0	1	1	0
0 = normalverteilt							
1 = nicht normalverteilt							
USA-East = 26°-65°N und 67°-110°W							

## DANKSAGUNG

Ich danke Prof. Dr. Christoph Schneider für die Betreuung der Arbeit und die fortwährende Unterstützung. Ebenso danke ich Prof. Dr. Andreas Wahner und Dr. Andreas Volz-Thomas für die Betreuung der Arbeit am ICG-2 des Forschungszentrums Jülich und für die interessante Aufgabenstellung. Die MOZAIC-Partner vom Laboratoire d'aerologie in Toulouse Jean-Pierre Cammas, Valerie Thouret und Philippe Nedelec haben die Kohlenmonoxid- und Ozondaten zur Verfügung gestellt. Dafür möchte ich mich bedanken. Tobias Sauter gilt mein Dank für die Bereitstellung der Wetterlagenklassifikation und die Programmierung der statistischen Tests. Dr. Karin Thomas und Hans-Werner Pätz danke ich für die Bereitstellung und Unterstützung bei der Weiterentwicklung von Routinen zur Datenauswertung. Dr. Herman Smit hat mit wertvollen Diskussionen zum Verständnis des troposphärischen Ozons beigetragen. Dr. Kenneth E. Pickering danke ich für die Bereitstellung der Blitzdaten des INTEX-Projektes der NASA. Dr. Mathieu Vrac gilt mein Dank für die Bereitstellung der Zeitreihen von Wetterlagen aus zwei seiner Klassifikationsverfahren. Helga London sowie Sabine Schröder und Thomas Heil danke ich für großartige IT-Unterstützung. Herzlich danken möchte ich auch Frau Brigitte Berger für die zuvorkommende Unterstützung in allen verwaltungstechnischen Fragen und Frau Gabi Nork für die freundliche Hilfe in organisatorischen Fragen.



JüI-4327  
Juli 2010  
ISSN 0944-2952

