

TEXTE

25/2016

# Geo-Engineering

Untersuchung und Bewertung von Methoden zum Geo-Engineering, die die Zusammensetzung der Atmosphäre beeinflussen



TEXTE 25/2016

Umweltforschungsplan des  
Bundesministeriums für Umwelt,  
Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit

Forschungskennzahl 3711 97 109  
UBA-FB 002032

## **Geo-Engineering**

### **Untersuchung und Bewertung von Methoden zum Geo-Engineering, die die Zusammensetzung der Atmosphäre beeinflussen**

von

Francois Benduhn  
Institute for Advanced Sustainability Studies e.V., Potsdam

Ulrike Niemeier  
Max-Planck-Institut für Meteorologie Hamburg

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

# Impressum

**Herausgeber:**

Umweltbundesamt  
Wörlitzer Platz 1  
06844 Dessau-Roßlau  
Tel: +49 340-2103-0  
Fax: +49 340-2103-2285  
info@umweltbundesamt.de  
Internet: www.umweltbundesamt.de

 /umweltbundesamt.de

 /umweltbundesamt

**Durchführung der Studie:**

Institute for Advanced Sustainability Studies e.V.  
Berliner Str. 130  
14467 Potsdam

**Abschlussdatum:**

Mai 2014

**Redaktion:**

Fachgebiet I 2.1 Klimaschutz  
Claudia Mäder

Publikationen als pdf:

<http://www.umweltbundesamt.de/publikationen/geo-engineering>

ISSN 1862-4804

Dessau-Roßlau, April 2016

Das diesem Bericht zu Grunde liegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit unter der Forschungskennzahl 3711 79 109 gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autorinnen und Autoren.

## **Kurzbeschreibung**

In dieser Arbeit wird der Einfluss von sogenanntem stratosphärischen Geoengineering auf die Ozonschicht der Stratosphäre mit globalen Zirkulationsmodellen untersucht. Stratosphärisches Geoengineering soll einen globalen Abkühlungseffekt erzeugen, welcher der globalen Erwärmung entgegenwirken soll.

Momentane Schätzungen gehen davon aus, dass dazu jährliche Injektionen in der Größenordnung von 1-10 Mt Schwefel notwendig sind. Diesen Schätzungen entsprechend werden Sensitivitätsstudien durchgeführt, die den Einfluss auf die Ozonschicht in Funktion der Injektionsrate und einiger Schlüsselparametern zu quantifizieren suchen.

Die Ergebnisse zeigen einen sehr komplexen Zusammenhang zwischen den beteiligten Prozessen. Insbesondere dem Zusammenspiel zwischen den Strahlungseigenschaften des Sulfataerosols, der stratosphärischen Zirkulation, den Polarwirbeln, und der Ozon- und Aerosolchemie scheint eine Schlüsselrolle zuzukommen. Unsere Berechnungen ergeben, dass über den Subtropen durch chemische Effekte mit einer Zunahme der Ozonschicht um bis zu 5% zu rechnen ist, während über den Polargebieten und den gemäßigten Breiten vorwiegend eine Abnahme der Ozonkonzentration um bis zu 10% zu erwarten ist. Die Resultate sind jedoch mit großen Unsicherheiten behaftet, die eine korrekte Quantifikation der Implikationen des Geoengineering auf die Ozonschicht mittels Modellexperimenten als wenig wahrscheinlich erscheinen lassen.

## **Abstract**

This study investigates the influence of so-called stratospheric geoengineering on the global stratospheric ozone layer with global modeling tools. Stratospheric geoengineering is bound to produce a global cooling effect that is supposed to counterbalance to a certain extent the global warming trend due to anthropogenic greenhouse gas emissions.

Current estimations assume that yearly injections of some 1-10 Mt sulphur equivalents are necessary to obtain the desired effect. In accordance to these estimations, we carry out sensitivity studies that aim at quantifying the effects on the ozone layer as a function of the injection rate and certain key parameters and uncertainties.

The results show a very complex linkage of the involved processes that determine the ozone layer. In particular, the interactions among the radiative properties of the sulphate aerosol, stratospheric circulation, the polar vortexes, and aerosol and ozone chemistry seem to be a key. Whereas chemical processes over the subtropical areas appear to induce an enhancement of the ozone layer of up to 5%, high latitudes and the polar areas seem to be up for a depletion of the ozone layer of up to 10%. However, these results are bound to a considerable amount of uncertainty of multiple origins, such that a reliable estimation of the implications of stratospheric geoengineering to the ozone layer may not at all be obtained with model experiments.

## Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis

Tabellenverzeichnis

Abkürzungen

1	Kurzfassung.....	1
1.1	Einleitung .....	1
1.2	Zusammenhänge der stratosphärischen Ozonchemie in Kürze.....	2
1.2.1	Stratospärische Ozonchemie .....	2
1.2.2	Wechselwirkung zwischen stratosphärischem Aerosol, polaren Wolken und Ozonchemie .....	3
1.3	Dynamik der ungestörten Stratosphäre in Kürze.....	5
1.3.1	Regionen der Stratosphäre.....	5
1.3.2	Brewer Dobson Zirkulation .....	5
1.3.3	Quasi biennale Oszillation (QBO).....	6
1.4	Modellbeschreibung und durchgeführte Simulationen .....	6
1.4.1	Modellbeschreibung.....	6
1.4.2	Beschreibung der Simulationen .....	7
1.5	Auswirkungen auf die Ozonschicht .....	10
1.5.1	Auswirkungen in Funktion der Injektionsrate .....	10
1.5.2	Unterscheidung zwischen chemischen und dynamischen Prozessen .....	11
1.6	Auswirkungen des SRMs auf die Dynamik der Stratosphäre .....	13
1.6.1	Auswirkung des SRMs auf die dynamischen Prozesse in den Tropen.....	13
1.6.2	Dynamische Prozesse in den mittleren und hohen Breiten .....	13
1.6.3	Auswirkungen auf den Spurenstofftransport.....	15
1.7	Schlussfolgerung.....	16
2	Summary .....	20
2.1	Introduction .....	20
2.2	Stratospheric Ozone Chemistry Interactions in a Nutshell.....	21
2.2.1	Stratospheric Ozone Chemistry .....	21
2.2.2	Interactions among Stratospheric Aerosol, Polar Stratospheric Clouds and Ozone Chemistry .....	22
2.3	Dynamics of the Stratosphere .....	23

2.3.1	Regions of the Stratosphere .....	24
2.3.2	Brewer-Dobson Circulation .....	24
2.3.4	Quasi-Biennial Circulation (QBO).....	24
2.4	Modell description and performed simulations .....	24
2.4.1	Model Description .....	25
	EMAC 25	
	ECHAM5-HAM .....	25
2.4.2	Performed Simulations .....	25
2.5	Implications to the Stratospheric Ozone Layer .....	28
2.5.1	Implications as a Function of the Injection Rate.....	28
2.5.2	Distinction between Chemical and Dynamical Processes .....	29
2.6	Impact of SRM on the Dynamics of the Stratosphere .....	31
2.6.1	Impact of SRM on Dynamical Processes in the Tropics .....	31
2.6.2	Impact of SRM on Dynamical Processes in the Middle and High Latitudes .....	31
2.6.3	Impact on Transport of Species .....	33
2.7	Conclusion .....	34
3	Einleitung.....	37
4	Ozonchemie im Zusammenhang mit stratosphärischem Geoengineering.....	40
4.1	Stratosphärische Ozonchemie .....	40
4.1.1	Reaktionen der Gasphase .....	40
4.1.2	Heterogene Reaktionen.....	43
4.2	Wechselwirkung zwischen stratosphärischem Aerosol, polaren Wolken und Ozonchemie.....	44
4.2.1	Stratosphärisches Aerosol.....	44
4.2.2	Stratosphärisches Aerosol und Ozonchemie im Rahmen des Geoengineering .....	45
4.2.3	Polare stratosphärische Wolken.....	48
4.2.4	Polare stratosphärische Wolken und Ozonchemie im Rahmen des Geoengineerings.....	49
5	Dynamik der ungestörten Stratosphäre .....	50
5.1	Regionen der Stratosphäre.....	50
5.1.1	Tropen.....	50
5.1.2	Mittlere Breiten.....	50

5.1.3	Polarwirbel.....	51
5.2	Brewer Dobson Zirkulation .....	52
5.3	Quasi biennale Oszillation (QBO).....	52
6	Modellbeschreibung und durchgeführte Simulationen.....	55
6.1	Modellbeschreibung.....	55
6.1.1	EMAC.....	55
6.1.2	ECHAM5-HAM.....	56
6.2	Beschreibung der Simulationen .....	56
6.2.1	Auswirkung der Emissionsstrategie auf die Evolution der Sulfatschicht .....	57
6.2.2	Übersicht der durchgeführten Simulationen.....	58
7	Auswirkungen von stratosphärischem Geoengineering auf das Ozon.....	61
7.1	Auswirkungen in Abhängigkeit von der eingebrachten Sulfatmenge.....	61
7.1.1	Auswirkungen im mehrjährigen zonalen Mittel.....	61
7.1.2	Zeitliche Entwicklung der Auswirkungen.....	62
7.2	Chemische und dynamische Effekte .....	65
7.2.1	Grundlegende Überlegungen zur Unterscheidung zwischen chemischen und dynamischen Effekten .....	65
7.2.2	Geographische und intraannuelle Abhängigkeiten .....	66
7.2.3	Vertikale Abhängigkeiten .....	71
8	Auswirkungen des SRMs auf die Dynamik der Stratosphäre.....	78
8.1	Auswirkung des SRMs auf die dynamischen Prozesse in den Tropen .....	78
8.2	Dynamische Prozesse in den mittleren und hohen Breiten.....	80
8.3	Auswirkungen auf den Spurenstofftransport.....	84
9	Schlussfolgerung .....	88
10	Quellenverzeichnis.....	91

## Abbildungsverzeichnis

- Abb. 1.1: (a) zonale Anomalie der Ozonsäule im Vergleich zum Kontrolllauf (links) und (b) vertikal integrierte Sulfatmasse der Aerosolphase (in mg/m<sup>2</sup>, rechts) im Jahresdurchschnitt der Jahre 2003-2006, 2004-2011 und 2003-2008, bei einer Injektionsrate von respektive 2, 4 und 8 Mt S pro Jahr.
- Abb. 1.2: Zonal gemittelte Anomalie der Ozonsäule relativ zum Kontrolllauf (a), und der vertikal integrierten Aerosolsulfatmasse relativ zum PSC-Lauf (b), im Jahresdurchschnitt der Jahre 2003-2006. Die Injektionsrate beträgt 2 Mt S pro Jahr.
- Abb. 1.3: Quasi biennale Oszillation bei verschiedenen Emissionsstärken: Ohne SRM (oben), mit Emissionen von 4 Mt S/Jahr (Mitte) und 8 Mt S/Jahr (unten). Mit zunehmender Emissionsstärke verlängert sich die Westphase in der Höhe von 50 hPa, bis hin zu einer konstanten Westphase. Blau abgebildet sind östliche Winde und rot westliche Winde.
- Abb. 1.4: 4Mt: Vertikalverteilung des zonalen Mittels der Konzentration (oben) in Phase 1 (links) und Phase 2 (rechts) und unten deren Differenzen als absolute Differenz [ppb] (links) und relative Differenz [%] (rechts). Zusätzlich ist die Anomalie der Stromlinien zwischen Phase 1 und Phase 2 (unten, links) abgebildet.
- Abb. 5.1: Modellsimulation der Verteilung von Schwefel (gelb) und Asche (grau) 7 Tage (links) und 15 Tage (rechts) nach einer Vulkaneruption in den mittleren Breiten. Bei einer Emission auf 40° N wird der Schwefel zunächst in der nördlichen Hemisphäre verteilt, anschließend auch auf der südlichen Hemisphäre. Emissionen in den Tropen verteilen sich gleichmäßiger auf beiden Hemisphären, wie Satellitenaufnahmen nach der Eruption des Pinatubo zeigen.
- Abb. 5.2: Brewer Dobson Zirkulation in der Stratosphäre, dargestellt anhand der Stromfunktion. Die Strömung folgt den Isolinien im Uhrzeigersinn (durchgezogene Linien) bzw. entgegen dem Uhrzeigersinn (gestrichelte Linien). A: Stromlinien des Kontrolllaufs gemittelt über die Monate Dezember, Januar und Februar (DJF), B: Mittel über die Monate Juni, Juli, August (JJA), C: jährliches Mittel, D: Differenz der Stromfunktion einer Simulation mit Schwefelemissionen von 8 Mt S/Jahr zum Kontrolllauf.
- Abb. 6.1: Links: Reduktion der solaren Einstrahlung am Erdboden in Anhängigkeit von der Emissionsstärke und verschiedener Emissionsszenarien. Variiert wurde die Höhe der Emissionen (60 hPa (rot) und 30 hPa (orange)), die Emissionsregion (rotes Dreieck und roter Stern), genaueres siehe Niemeier et al. (2011), die Größenverteilung der Aerosole (blau) und die vertikale Modellauflösung (gelb). Rechts: Abschätzung der Sulfatmissionen pro Jahr, die gemäß MPI-ESM benötigt würde, um die Erwärmung durch ansteigende Emissionen ab dem Jahr 2020 auszugleichen. Die orange Kurve zeigt eine Abschätzung der Emissionsstärke bei einem mittleren Szenario (RCP4.5), die blaue Kurve unter Bedingungen, die in etwa einem weiterhin gleichbleibenden Anstieg der Emissionen wie zu Beginn des 21. Jahrhundert entsprechen (RCP8.5).

- Abb. 7.1: (a) zonale Anomalie der Ozonsäule im Vergleich zum Kontrolllauf (links) und (b) vertikal integrierte Sulfatmasse der Aerosolphase (in  $\text{mg}/\text{m}^2$ , rechts) im Jahresdurchschnitt der Jahre 2003-2006, 2004-2011 und 2003-2008, bei einer Injektionsrate von respektive 2, 4 und 8 Mt S pro Jahr.
- Abb. 7.2: Zeitliche Evolution der zonal gemittelten Ozonsäule (DU) als Funktion der geographischen Breite, für die Injektionsszenarien von 2, 4 und 8 Mt S pro Jahr. Absolute Werte inkl. Kontrolllauf (links), sowie Differenzen zum Kontrolllauf (rechts). Man beachte die hohe interannuelle Variabilität des polaren Ozons beim 2 Mt Lauf, während die 4 und 8 Mt Läufe einen eindeutigen Trend aufweisen.
- Abb. 7.3: Wie Abbildung 7.2, jedoch für die Aerosolsulfatsäule ( $\text{mg}/\text{m}^2$ ). Für die 4 und 8 Mt S Läufe nimmt der meridionale Transport zu beiden Hemisphären hin im Lauf der Zeit ab.
- Abb. 7.4: Geographische Verteilung der Ozonsäule des 2 Mt Laufs im Durchschnitt der Jahre 2003 bis 2006. Gezeigt werden (a) die absoluten Referenzwerte (DU) aus dem Kontrolllauf (oben links), sowie die Anomalien (b) des PSC Laufs (oben rechts), (c) des PSC+HEAT Laufs (unten links), und (d) des PSC+HEAT+MICRO Laufs, allesamt relativ zum Kontrolllauf.
- Abb. 7.5: Geographische Verteilung der vertikal integrierten Aerosolsulfatmasse ( $\text{mg}/\text{m}^2$ ) des 2 Mt Laufs im Durchschnitt der Jahre 2003 bis 2006. Gezeigt werden (a) die absoluten Referenzwerte des Kontrolllaufs (oben links), sowie (b) des PSC Laufs (oben rechts), die Anomalien (c) des PSC+HEAT Laufs (unten links), und (d) des PSC+HEAT+MICRO Laufs relativ zu (B). Man beachte die unterschiedliche Skala der Graphiken (a) und (b).
- Abb. 7.6: Zonal gemittelte Anomalie der Ozonsäule relativ zum Kontrolllauf (a), und der vertikal integrierten Aerosolsulfatmasse relativ zum PSC-Lauf (b), im Jahresdurchschnitt der Jahre 2003-2006. Die Injektionsrate beträgt 2 Mt S pro Jahr.
- Abb. 7.7: Zonale Anomalie der Ozonsäule im Jahresverlauf und als Funktion der geographischen Breite bei Emission von 2 Mt S pro Jahr. Im Uhrzeigersinn, (a) Absolutwerte des Kontrolllaufs (oben links), und Relativwerte (b) des PSC Laufs, (c) des PSC+HEAT Laufs, und (d) des PSC+HEAT+MICRO Laufs.
- Abb. 7.8: Wie Abb. 7.7 jedoch für die Aerosolsulfatsäule ( $\text{mg}/\text{m}^2$ ), in (b) werden Absolutwerte gezeigt, (c) und (d) zeigen Relativwerte zu (b).
- Abb. 7.9: Zonale Anomalie des molekularen Ozonmischungsverhältnisses (in ppm) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Mittel der Jahre 2003-2006. In (a) werden die Referenzwerte des Kontrolllaufs gezeigt (oben links). Um die Relevanz der Anomalie der Mischungsverhältnisse besser abschätzen zu können, werden die Referenzwerte in DU angegeben (siehe Text). Auf diese Weise wird die tatsächliche vertikale Verteilung der Ozonschicht gezeigt. Es folgen die Differenzen der Mischungsverhältnisse zum Referenzlauf im Uhrzeigersinn für (b) den PSC Lauf, (c) den PSC+HEAT Lauf, und (d) den PSC+HEAT+MICRO Lauf. Man beachte die logarithmische Druckachse in der Vertikalen.

- Abb. 7.10: Zonale Anomalie des Aerosolsulfatgehalts ( $\text{ng}/\text{m}^3$ ) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Mittel der Jahre 2003-2006. Zum Kontrolllauf und dem PSC-Lauf werden absolute Werte angegeben. Man beachte den Unterschied in der Skala. Zu den PSC+HEAT und PSC+HEAT+MICRO Läufen werden die Differenzen zum PSC-Lauf abgebildet. Siehe auch Abb. 7.9.
- Abb. 7.11: Zonale Anomalie des Mischungsverhältnisses des  $\text{NO}_x$  (in ppb) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Durchschnitt der Jahre 2003-2006 im Vergleich zum Kontrolllauf. Siehe auch Abb. 7.9.
- Abb. 7.12: Zonale Anomalie des Mischungsverhältnisses des  $\text{ClO}+\text{Cl}_2\text{O}_2$  (in ppb) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Durchschnitt der Jahre 2003-2006 im Vergleich zum Kontrolllauf.  $\text{Cl}_2\text{O}_2$  ist nur im Bereich der Pole augenscheinlich, und erscheint in den Graphiken als augenförmiges Gebilde bei etwa 30 hPa Druck auf ca.  $75^\circ$  Breite. Siehe auch Abb. 7.9.
- Abb. 7.13: Zonale Anomalie des Mischungsverhältnisses des  $\text{ClONO}_2$  (in ppb) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Durchschnitt der Jahre 2003-2006 im Vergleich zum Kontrolllauf. Siehe auch Abb. 7.9.
- Abb. 7.14: Zonale Anomalie der Temperatur (K) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Durchschnitt der Jahre 2003-2006 im Vergleich zum Kontrolllauf. Siehe auch Abb. 7.9.
- Abb. 8.1: Quasi biennale Oszillation bei verschiedenen Emissionsstärken: Ohne SRM (oben), mit Emissionen von 4 Mt S/Jahr (Mitte) und 8 Mt S/Jahr (unten). Mit zunehmender Emissionsstärke verlängert sich die Westphase in der Höhe von 50 hPa, bis hin zu einer konstanten Westphase. Blau abgebildet sind östliche Winde und rot westliche Winde.
- Abb. 8.2: Zonales Jahresmittel der Temperaturanomalie [K] für MT4 (links) und MT8 (rechts) als Differenz zum Kontrolllauf.
- Abb. 8.3: Zonales Mittel des Zonalwindes [m/s] des Kontrolllaufes als Differenz zwischen Westwind- und Ostwindphasen der QBO im Dezember (links) und Januar (rechts). Schattiert gekennzeichnet sind Bereiche welche nicht signifikant sind. Getestet wurde mit einem t-Test auf 95% Standardabweichung.
- Abb. 8.4: Differenz des zonal gemittelten zonalen Windes zwischen Phase 1 und Phase 2 des Kontrolllaufes (links) und MT4 (rechts) der Monate Dezember (oben) Januar (Mitte) und Februar (unten).
- Abb. 8.5: 4Mt: Vertikalverteilung des zonalen Mittels der Konzentration (oben) in Phase 1 (links) und Phase 2 (rechts) und unten deren Differenzen als absolute Differenz [ppb] (links) und relative Differenz [%] (rechts). Zusätzlich ist die Anomalie der Stromlinien zwischen Phase 1 und Phase 2 (unten, links) abgebildet.
- Abb. 8.6: Hovmöllerdiagramm des normierten Sulfatburdens [%]. Oben: Composites der Phase 1 (links) und Phase 2 (rechts) der Simulation 4Mt. Unten: Sulfatburden ohne Composites für Mt4 (links) und Mt8 (rechts). Die zonalen Mittel des monatlichen Sulfatburdens, vertikal integrierte Konzentration, wurden

Untersuchung und Bewertung von Methoden zum Geo-Engineering, die die Zusammensetzung der Atmosphäre beeinflussen.

mit dem globalen Jahresmittel gewichtet und für ein Jahr aufgetragen. Die Abbildung zeigt damit die Abweichung vom globalen Mittel.

## List of Figures

- Fig. 2.1: (a) zonal anomaly of the ozone column in comparison to the control run (left) and (b) vertically integrated sulphur mass of the aerosol liquid phase (in mg/m<sup>2</sup>, right) averaged for years 2003-2006, 2004-2011 and 2003-2008, at injection rates of 2, 4 und 8 Mt S per annum, respectively.
- Fig. 2.2: Zonally averaged anomaly of the ozone column relative to control (a), and of the vertically integrated aerosol sulphur mass relative to the PSC run (b), average for years 2003-2006. The injection rate is 2 Mt S per annum.
- Fig. 2.3: Zonal mean of zonal wind close to the equator. Quasi biennial circulation for different emission strength: without SRM (A) emissions of 4 MtS/year (B) and emissions of 8 MtS/year. With increasing emission strength the period of the west phase is prolonged.
- Fig. 2.4: 4Mt vertical distribution of the zonally averaged sulfate concentration (top) in phase 1 (left) and phase 2 (right). Bottom: Anomaly between phase 1 and phase 2 as absolute difference [ppb] (left) and relative difference (left). Isolines show the anomaly of stream function

## **Tabellenverzeichnis**

- Tab. 1: Simulationen zum Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf das Ozon mit dem Model EMAC, welches neben Aerosolmikrophysik auch eine Gasphasenchemie umfasst.
- Tab. 2: Simulationen zum Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf die dynamischen Prozesse der Stratosphäre mit dem Modell ECHAM5-HAM, welches lediglich mit einer Aerosolmikrophysik gekoppelt ist.
- Tab. 3: Simulationen zum Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf das Ozon mit dem Model EMAC, welches neben Aerosolmikrophysik auch eine Gasphasenchemie umfasst.
- Tab. 4: Simulationen zum Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf die dynamischen Prozesse der Stratosphäre mit dem Modell ECHAM5-HAM, welches lediglich mit einer Aerosolmikrophysik gekoppelt ist.

### List of tables

Tab. 1: Impact of the stratospheric sulfur layer on stratospheric ozone. Simulations with EMAC with coupled chemistry and aerosol microphysics.

Tab. 2: Impact of stratospheric sulfur layer on dynamical processes in the stratosphere. Simulations with ECHAM5-HAM with aerosol microphysics only.

## Abkürzungen

CCMVal	Chemistry-Climate Model Validation activity
CDR	Carbon Dioxide Removal
CMIP5	Coupled Model Intercomparison Project Phase 5
ClO	Chlormonoxid
Cl <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	Dichlordioxid
ClONO <sub>2</sub>	Chlornitrat
CO <sub>2</sub>	Kohlendioxid
ECHAM5	globales Zirkulationsmodell des MPI für Meteorologie
EMAC	ECHAM5 Model of Aerosol and Chemistry
ESM	Erdsystemmodell
GCM	Globales Zirkulationsmodell
HCl	Salzsäure
HNO <sub>3</sub>	Salpetersäure
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Schwefelsäure
HAM	Hamburg Aerosol Module
NO	Stickstoffmonoxid
NO <sub>2</sub>	Stickstoffdioxid
O <sub>3</sub>	Ozon
PSC	Polar Stratospheric Clouds
QBO	Quasi Biennale Oscillation
S	Schwefel
SO <sub>2</sub>	Schwefeldioxid
SRM	Solar Radiation Management
UV-Licht	Ultraviolettes Licht

# 1 Kurzfassung

## 1.1 Einleitung

In letzter Zeit wurden vermehrt sogenannte Geoengineering Methoden diskutiert, welche sich zum Ziel setzen die Folgen des globalen Klimawandels technologisch in den Griff zu bekommen. Der Überbegriff Geoengineering (alternativ wird auch der Begriff Klimaengineering verwendet) vereinigt zwei sehr unterschiedliche Ansätze. Sogenannte Carbon Dioxide Removal (CDR) Technologien sollen helfen, die anthropogenen Emissionen von Kohlendioxid sozusagen rückgängig zu machen, indem Kohlendioxid der Atmosphäre auf technischem Wege entzogen werden soll. Sogenannte Solar Radiation Management (SRM) Methoden verfolgen den Ansatz der direkten globalen Manipulation der globalen Strahlungsbilanz, wodurch eine globale Abkühlung durch die Reduktion der kurzwelligen Einstrahlung am Erdboden erreicht werden soll. Entsprechende SRM Methoden sind insbesondere die großskalige Modifikation der Strahlungseigenschaften der marinen Wolken, Spiegel im All sowie das Einbringen einer reflektierenden Aerosolschicht in die Stratosphäre. Eine Bestandsaufnahme der Debatte zum Geoengineering wurde vom Kiel Earth Institute im Auftrag des Bundesministeriums für Bildung und Forschung herausgegeben (Rickels et al., 2011), sowie von der Royal Society in London in Auftrag gegeben (Royal Society, 2009).

In diesem Forschungsvorhaben werden die Auswirkungen des stratosphärischen SRM (Budyko, 1977; Crutzen, 2006) auf die Dynamik und die Chemie der Stratosphäre untersucht. Neben den im Vergleich zur Mitigation vermuteten geringen Kosten bietet diese Methode eine voraussichtlich hohe Effektivität (Royal Society, 2009). Nachteile dieser Methode sind jedoch die hohen Risiken, weshalb sie nach Crutzen (2006) ursprünglich ausschließlich als Notfallszenario für den Fall eines außer Kontrolle geratenen Klimawandels vorgesehen war. SRM stellt, ebenso wie die Freisetzung von Treibhausgasen, einen Eingriff in das globale Klimageschehen dar. Allerdings unterscheiden sich beide Prozesse durch ihre räumlichen und zeitlichen Eigenschaften. Als Folge wird sich ein durch SRM beeinflusstes Klima immer von einem Klima ohne Geoengineering unterscheiden, selbst wenn in beiden Fällen z.B. eine identische globale Mitteltemperatur in Bodennähe resultieren sollte. Bekannte Auswirkungen des SRMs auf das Klima sind Veränderungen im hydrologischen Zyklus (Bala et al., 2008; Jones et al., 2010), Änderungen der globale Zirkulation durch die Verringerung des troposphärischen Temperaturgradienten zwischen Pol und Äquator (Schmidt et al., 2012), sowie der Abbau der stratosphärischen Ozonschicht (Tilmes et al., 2009; Heckenorn et al., 2010; Aquila et al., 2014).

Zur Erzeugung einer reflektierenden Aerosolschicht in der Stratosphäre werden am häufigsten flüssige Sulfataerosole in Betracht gezogen. Dazu soll  $\text{SO}_2$  als Vorläufergas in die untere Stratosphäre (ca. 18 bis 25 km Höhe) eingebracht werden. Durch Oxidation und der Kondensation von Schwefelsäure und Wasser werden Sulfataerosole gebildet, welche kurzwellige Strahlung reflektieren und so die solare Einstrahlung am Boden reduzieren. Stratosphärische Sulfataerosole reflektieren und streuen nicht nur kurzwellige Strahlung, zusätzlich absorbieren sie im nahen Infrarot und im Bereich langewelliger Strahlung (Lohmann and Feichter, 2005). Die verminderte solare Einstrahlung am Erdboden führt zu einer Reduktion des mittleren globalen Niederschlags und zu regional veränderten Niederschlagsmustern (Jones et al., 2010; Niemeier et al., 2013).

Die Absorption langwelliger Strahlung, der Treibhauseffekt der Sulfate, führt zu einer Erwärmung der unteren Stratosphäre, welche die Zirkulation der Stratosphäre und somit den Transport des eingebrachten Schwefeldioxids bzw. der Sulfataerosole beeinflusst. Hinzu kommt eine direkte und indirekte Wechselwirkung mit stratosphärischem Ozon durch die Gasphasenchemie, sowie durch chemische Oberflächenprozesse der Aerosole und der polaren stratosphärischen Wolken, welche für den polaren Ozonabbau von hauptsächlicher Bedeutung sind. Zur Simulation des Ozonabbaus als Folge von stratosphärischem Geoengineering ist es daher notwendig, ein globales Zirkulationsmodell zu verwenden, das die Wechselwirkungen zwischen Aerosoldynamik, der Chemie der Gasphase und der Aerosoloberfläche sowie der lokalen Strahlungsbilanz in ihrer Gesamtheit darstellt.

Eine natürliche, wenn auch unvollständige Parallele zum Geoengineering mit einer künstlich erzeugten Sulfataerosolschicht sind Vulkaneruptionen. Beobachtungen nach dem Ausbruch des Pinatubos 1991 auf den Philippinen zeigen zusätzlich zu einer Tendenz des Abbaus der stratosphärischen Ozonschicht eine Verlängerung der Phase der quasi biennialen Oszillation (quasi biennial oscillation, QBO) in der tropischen Stratosphäre. Bei der QBO handelt es sich ähnlich wie bei El Nino, um ein dynamisch oszillierendes Phänomen im Erdsystem, bei welchem die typische zonale Strömungsrichtung in der Stratosphäre in unregelmäßigen, jedoch annähernd biennialen, zeitlichen Abständen in Funktion der Höhe umschlägt. Die QBO konnte in diversen Studien mit typischen lokalen Temperaturmustern der Stratosphäre in Verbindung gebracht werden. Es ist daher wahrscheinlich, dass mögliche Veränderungen der QBO infolge des Geoengineering in Wechselwirkung sich ebenfalls auf das stratosphärische Ozon auswirken.

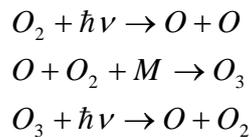
## **1.2 Zusammenhänge der stratosphärischen Ozonchemie in Kürze**

### **1.2.1 Stratosphärische Ozonchemie**

Die stratosphärische Ozonchemie unterscheidet sich von der Ozonchemie der Troposphäre unter anderem durch die relative Abwesenheit von organischen Verbindungen. Das resultierende System ist dennoch komplex und gekennzeichnet durch sich gegenseitig beeinflussende Reaktionen. Im Wesentlichen lässt sich die stratosphärische Ozonchemie in Prozesse unterteilen, welche ausschließlich in der Gasphase stattfinden, sowie solche, die das Vorhandensein einer Flüssigphase benötigen. Der Einfluss des Geoengineering auf die stratosphärische Ozonschicht findet primär über die letzteren sogenannten heterogenen Prozesse statt. Des Weiteren muss zwischen Prozessen unterschieden werden, welche global stattfinden, und solchen, die spezifisch für die polare Ozonchemie sind. Die polare Ozonchemie unterscheidet sich von der globalen zum einen durch bestimmte chemische Reaktionen der Gasphase, die das Geschehen dominieren, und zum anderen durch polare stratosphärische Wolken, welche innerhalb des Polarwirbels einen entscheidenden Einfluss auf die Ozonchemie haben.

Die stratosphärische Ozonchemie der Gasphase ist durch sogenannte Zyklen gekennzeichnet. Hierbei handelt es sich um chemische Prozesse bei denen bestimmte chemische Verbindungen die in der Summe der chemischen Reaktionen unverändert bleiben eine Schlüsselrolle einnehmen. Ozon wird in den entsprechenden Zyklen entweder aufgebaut, abgebaut, oder zugleich auf- und abgebaut. In letzterem Fall spricht man von einem Nullzyklus in Bezug auf

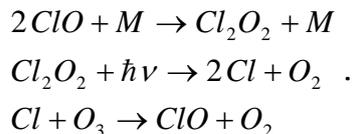
das Ozon. Paradoxe Weise ist einer dieser Nullzyklen, der sogenannte Chapman-Zyklus für den Aufbau der stratosphärischen Ozonschicht verantwortlich:



wobei  $h\nu$  für die Dissoziation von Ozon durch ultraviolettes Licht steht, und  $M$  für ein nicht-spezifisiertes Luftmolekül, das die Rolle eines Katalysators einnimmt.

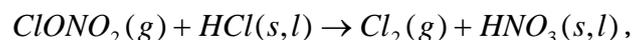
Im Gleichgewichtszustand wird durch den Chapman-Zyklus netto weder Ozon auf- noch abgebaut. Falls das chemische System jedoch, z.B. durch eine Temperaturveränderung, aus dem Gleichgewicht gerät, so wird es sich den veränderten Bedingungen anpassen indem es versucht ein neues Gleichgewicht auszubilden, in dessen Folge sich die Konzentrationen der einzelnen Verbindungen verändern.

Die Ozonabbauzyklen der Stratosphäre sind sogenannte Nettoabbauzyklen, die im Gegensatz zu den sogenannten Nullzyklen unabhängig vom Zustand des Systems immer einen Abbau bewirken. Hierbei handelt es sich um den  $\text{NO}_x$ -Zyklus (involviert  $\text{NO}_2$  und  $\text{NO}$ ), den  $\text{HO}_x$ -Zyklus ( $\text{OH}$  und  $\text{HO}_2$ ), und den  $\text{ClO}_x$ -Zyklus ( $\text{Cl}$  und  $\text{ClO}$ ). Unter den besonders kalten Bedingungen der Antarktis und der Arktis wird vornehmlich Ozon über eine spezielle Form des  $\text{ClO}_x$ -Zyklus abgebaut:



Bei der ersten Reaktion dieses Zyklus handelt es sich um eine sogenannte Dreikörperreaktion, deren Reaktionsrate mit abnehmender Temperatur mit höherer Wahrscheinlichkeit der Molekülbegegnung zunimmt.

Heterogene Reaktionen spielen ebenfalls eine besondere Rolle beim Abbau des polaren Ozons. Durch folgende Reaktion wird Chlorgas freigesetzt, welches in Verbindung mit Sonnenstrahlung zu Chlorradikalen photolysiert und somit in aktivierter Form dem  $\text{ClO}_x$ -Zyklus zur Verfügung gestellt wird:



wobei die Indizes  $g,s,l$  für die entsprechenden Aggregatzustände gasförmig, fest und flüssig stehen.

Für eine ausführlichere Beschreibung der stratosphärischen Ozonchemie verweisen wir auf das Kapitel 4 dieser Studie.

### 1.2.2 Wechselwirkung zwischen stratosphärischem Aerosol, polaren Wolken und Ozonchemie

Das stratosphärische Aerosol und die polaren stratosphärischen Wolken üben durch die an ihrer Oberfläche stattfindenden heterogenen Reaktionen, sowie in ihrer Funktion als Senke bestimmter chemischer Verbindungen, so z.B.  $\text{NO}_x$ , großen Einfluss auf das Ozon aus.

Stratosphärisches Aerosol besteht chemisch vornehmlich aus einer binären  $\text{H}_2\text{O}-\text{H}_2\text{SO}_4$  Lösung, in welche andere anorganische Substanzen gelöst werden. Neben diesen rein flüssigen Partikeln gibt es in geringerem Maße mineralische Partikel, die im Allgemeinen von einer flüssigen Phase umgeben sind. Mineralische Partikel werden durch Transport aus der Troposphäre in die Stratosphäre eingebracht. Die Menge an mineralischem Aerosol ist im Allgemeinen sowohl durch den Transport als auch durch die Sedimentation dieser ungleich größeren und dichteren und daher auch schwereren Partikel begrenzt. Durch vulkanische Eruptionen, die Schwefel und feine Asche direkt in die Stratosphäre emittieren, wird die Menge mineralischer Partikel mehr oder weniger häufig deutlich erhöht. Vulkanische Eruptionen führen ebenfalls in Analogie zum stratosphärischen Geoengineering zu einer Zunahme des Sulfataerosols in der Stratosphäre.

Polare stratosphärische Wolken (PSC) bilden sich lediglich unter den besonders kalten Bedingungen des polaren Winters, vorwiegend über der Antarktis. PSC bestehen aus festen oder flüssigen Partikeln, welche je nach bestimmter chemischer Zusammensetzung in bestimmte Typen unterteilt werden. Der Einfluss der PSC auf die Ozonchemie gilt als entscheidend bei der Ausbildung des polaren Ozonlochs. Stratosphärisches Geoengineering könnte die Eigenschaften auf bestimmten Wegen verändern. Durch Messungen über der Antarktis gibt es empirische Evidenz, dass Vulkanausbrüche, und daher auch stratosphärisches Geoengineering, die Eigenschaften von PSC verändern können (e.g., Deshler et al., 1994). Wir werden in dieser Studie versuchen die Implikationen veränderter PSC-Eigenschaften auf das Ozon einzugrenzen.

Das stratosphärische Aerosol kann seinerseits auf die Ozonchemie erheblichen Einfluss ausüben:

- (1) Aerosol absorbiert sowohl kurzwellige als auch langwellige Strahlung. Dies kann zu einem relevanten lokalen Aufwärmeeffekt führen, welcher sowohl lokal die chemischen Reaktionsraten beeinflusst, als auch die globale Zirkulation der Stratosphäre.
- (2) Aerosol reflektiert die kurzwellige Strahlung und beeinflusst somit die strahlungsabhängigen chemischen Reaktionen. Zusätzlich führt der durch das Aerosol bedingte Streueffekt zu einer erhöhten Absorption von UV-Licht durch das Ozon, welche den Aufwärmeeffekt des Aerosols indirekt verstärkt.
- (3) Die heterogenen Reaktionsraten sind in Analogie zu den polaren stratosphärischen Wolken von der Aerosoloberfläche abhängig.
- (4) Der Wassergehalt von Flüssigaerosol könnte die spezifische Feuchte der Stratosphäre erhöhen und somit den  $\text{HO}_x$ -Abbauzyklus sehr signifikant antreiben.
- (5) Die Aufnahmefähigkeit des Aerosols gegenüber bestimmten chemischen Verbindungen nimmt mit der Aerosolflüssigmasse zu. Durch diesen Vorgang wird der  $\text{NO}_x$ -Zyklus mit zunehmender Aerosolmasse tendenziell ausgebremst.
- (6) Das Aerosol beeinflusst die mikrophysikalischen Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken, welche wiederum den Abbau des polaren Ozons während der Ausbildung des Ozonlochs maßgeblich bestimmen.

### 1.3 Dynamik der ungestörten Stratosphäre in Kürze

Anders als in der Troposphäre, wo der stärkste Temperaturgradient zwischen dem Äquator und den Polen auftritt, erstreckt sich in der Stratosphäre ein kontinuierlicher Temperaturgradient zwischen dem Sommer- und dem Winterpol. Eine weitere Besonderheit der Stratosphäre gegenüber der Troposphäre ist der Antrieb der Zirkulation. Dieser erfolgt nur zum Teil durch Druckunterschiede infolge von Temperaturgradienten, die wesentliche Ursache dynamischer Vorgänge in der Troposphäre, sondern insbesondere durch die Dissipation von Rossby- und Schwerewellen, die ihre Energie an die Umgebung abgeben. Für eine ausführlichere Beschreibung der Dynamik der Stratosphäre verweisen wir auf ein E-Textbuch des NASA Goddard Institutes for Space Studies (NASA, 2000).

#### 1.3.1 Regionen der Stratosphäre

Die Stratosphäre lässt sich in vier Regionen aufteilen: Tropen, mittlere Breiten (Brandungszone), Polarwirbel und untere Stratosphäre, welche die Übergangsregion zur Troposphäre bildet.

Die stratosphärischen Tropen erstrecken sich von  $20^{\circ}$  N bis  $20^{\circ}$  S. In den Tropen ist die solare Einstrahlung ausreichend energiereich, um photolytisch Ozon zu bilden. Diese Region ist somit die Quellregion für Ozon und wird von dort via Brewer Dobson Zirkulation (siehe nächster Abschnitt) global verteilt. Dynamisch dominiert die quasi biennale Oszillation (QBO).

Die mittleren Breiten der Stratosphäre werden auch als Brandungszone bezeichnet. Hier dissipieren die planetaren Wellen (Rossbywellen) und geben ihre Energie ab, welche die Brewer Dobson Zirkulation antreibt. Zudem treffen hier ozonreiche Luftmassen vom Äquator auf ozonärmere Luftmassen der Polarregionen und werden durch turbulente Vorgänge durchmischt.

In den hohen Breiten bildet sich in der jeweiligen stratosphärischen Winterhemisphäre ein Band mit hohen zonalen Windgeschwindigkeiten, der Polarwirbel, genauer Polarnacht-Strahlstrom. Polarwirbel sind großräumige Höhentiefs und eine Folge der fehlenden solaren Einstrahlung in den Wintermonaten und der damit verbundenen niedrigen Temperaturen. Der Polarwirbel ist auf der Südhalbkugel wesentlich stabiler als auf der Nordhalbkugel, wo die Landmassen Störungen in der zonalen Strömung hervorrufen. Der antarktische Polarwirbel verhindert im dortigen Winter einen Austausch der Luftmassen in der Polregion und blockiert den Transport von Spurenstoffen zum Pol.

#### 1.3.2 Brewer Dobson Zirkulation

Die großskalige Dynamik der Stratosphäre wird durch die sogenannte Brewer Dobson Zirkulation dominiert: Aufsteigende Luftmassen in Äquatornähe, Transport polwärts und absteigende Bewegung in den polaren Breiten. Diese großskalige Zirkulation verteilt Luftmassen und Spurenstoffe global in der Stratosphäre. Zum Beispiel Ozon, welches nur in den Tropen gebildet wird, wird über die Brewer Dobson Zirkulation zu den Polen transportiert. Die Brewer Dobson Zirkulation manifestiert sich in kalten, absteigenden Luftmassen am Winterpol und als Ausgleich entstehenden Aufwärtsbewegungen in den Tropen. Angetrieben wird die Brewer Dobson Zirkulation jedoch durch brechende Rossbywellen in der polaren Winterhemisphäre.

### 1.3.3 Quasi biennale Oszillation (QBO)

Der dominierende regionale dynamische Prozess in den Tropen ist die QBO. In einer Höhe von etwa 15 km bis 30 km, der unteren Stratosphäre, wechselt die zonale Windrichtung mit einer Periode von 22 bis 34 Monaten zwischen Ost- und Westwind. Die horizontale Erstreckung der QBO beschränkt sich auf einen Bereich in den inneren Tropen zwischen 15° N und 15° S. Abbildung 1.3a zeigt oben die von ECHAM5-HAM berechnete QBO der ungestörten Stratosphäre am Äquator. Blau abgebildet ist das zonale Mittel des östlichen Zonalwindes und rot das des westlichen Zonalwindes. Die QBO erstreckt sich von 5 hPa bis hinunter auf etwa 60 hPa und reicht damit nicht ganz bis an die in der Natur beobachteten 100 hPa heran. Zwischen 1 und 5 hPa wechseln sich Ost- und Westwinde im halbjährlichen Rhythmus ab.

## 1.4 Modellbeschreibung und durchgeführte Simulationen

Alle Resultate dieser Studie wurden mit einem globalen atmosphärischen Zirkulationsmodell (ECHAM5) erstellt, welches in zwei Varianten verwendet wurde:

- 1) gekoppelt mit dem aerosolmikrophysikalischen Modul HAM (ECHAM5-HAM), sowie
- 2) zusätzlich zur Aerosolmikrophysik mit Modulen gekoppelt, die die Simulation der heterogenen Chemie und der Ozonchemie unter stratosphärischen Bedingungen erlauben und um ein Strahlungstransportmodell ergänzt sind (EMAC).

Die für das Vorhaben notwendige Rechenzeit wurde vom Deutschen Klimarechenzentrum zur Verfügung gestellt.

### 1.4.1 Modellbeschreibung

Eine der Voraussetzungen des Vorhabens war die Verwendung von allgemeinen Zirkulationsmodellen (GCM) der Atmosphäre mit gekoppelter Aerosolmikrophysik und Chemie. Das Zirkulationsmodell ECHAM5 (Roeckner, 2003) wurde in der Version für die mittlere Atmosphäre MAECHAM (Giorgetta et al., 2006) verwendet und deckt einen Höhenbereich bis 0.01 hPa (~80km) ab. Erst die hohe vertikale Auflösung mit 90 Schichten ermöglicht eine explizite Berechnung der QBO.

### EMAC

Die Bedingungen zur Berechnung des Einflusses der stratosphärischen Sulfataerosolschicht auf tropisches und polares Ozon erfüllt das globale Chemie-, Aerosol- und Zirkulationsmodell EMAC (Joeckel et al., 2006): Es basiert auf der Kombination des GCMs ECHAM5 mit einer Vielzahl von aerosol- und chemiespezifischen Submodellen. Von besonderer Bedeutung waren die Komponenten zur Berücksichtigung atmosphärenchemischer Prozesse (MECCA; Sander et al., 2005), zur Aerosolmikrophysik und -chemie (GMXe, Pringle, 2011) und zu den polaren stratosphärischen Wolken (PSC, Buchholtz, 2005). MECCA enthält ein umfangreiches Reaktionssystem der atmosphärischen Chemie, gültig sowohl für die Troposphäre als auch für die Stratosphäre. EMAC simuliert die Prozesse, die zur Bildung der Ozonschicht notwendig sind und zeigt bei Vergleichen mit Messungen gute Ergebnisse (Jöckel et al., 2006). Diese Modellkombination wurde für die Sensitivitätsstudien in Kapitel 7 verwendet.

## **ECHAM5-HAM**

In der Modellversion ECHAM5-HAM wird die Bildung und Entwicklung von Sulfataerosolen mit dem mikrophysikalischen Aerosolmodell HAM berechnet, welches interaktiv an ECHAM5 gekoppelt ist. ECHAM5 wurde in Kombination mit HAM (Stier et al., 2005) zur Simulation der Entwicklung einer vulkanischen Aerosolwolke nach Vulkanausbrüchen und im Rahmen der IMPLICC Studie (Niemeier et al., 2011, 2013) verwendet. Das Modell zeigt beim Vergleich mit Messungen nach der Pinatuboeruption gute Ergebnisse (Niemeier et al., 2009; Toohey et al., 2011). Dieses Modell wurde für die Dynamikstudie zur QBO (Kapitel 8) verwendet.

### **1.4.2 Beschreibung der Simulationen**

Die aus Simulationen abgeschätzte Schwefelmenge, die benötigt würde, um die Wirkung der anthropogenen Treibhausgase in der Atmosphäre auszugleichen, divergiert zum Teil erheblich. Dafür verantwortlich sind unterschiedliche Aerosolgrößenverteilungen, verschiedenen angenommen regionale Verteilungen der Aerosole zwischen Tropen und Polen und daraus resultierende unterschiedlicher Strahlungsantrieb der stratosphärischen Sulfatschicht. Gegenwärtige Schätzungen bewegen sich im Rahmen von 1-10 Mt S pro Jahr (Rasch et al., 2008; Niemeier et al., 2013). Die Schwefel- und Sulfatkonzentration wird generell in Schwefeläquivalent angegeben.

Diesen Abschätzungen folgend, führten wir Simulationen mit Injektionen von 2Mt S, 4 Mt S und 8 Mt S pro Jahr durch, die zirkumäquatorial in Form des Vorläufergases SO<sub>2</sub> vorgenommen wurden. Die Simulationen wurden mit einer horizontalen Auflösung von 2.1° x 2.1° (T42) und 90 vertikalen Schichten, bis 0,01 hPa durchgeführt. Die Simulationsdauer betrug mit ECHAM5-HAM 30 Jahre, mit dem wesentlich rechenzeitaufwändigerem EMAC 7 bis 13 Jahre.

Die Tabellen 1 und 2 geben einen Überblick über die durchgeführten Simulationen und eine sehr kurze Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse.

Tab. 1: Simulationen zum Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf das Ozon mit dem Model EMAC, welches neben Aerosolmikrophysik auch eine Gasphasenchemie umfasst.

Emission Mt S/Jahr	Strahlungs- kopplung	Einfluss auf PSC	Transport	Ozon	QBO Westphase
2	ja	nein	Transport vorwiegend in die Südhemisphäre durch Abschwächung des südlichen Polarwirbels	Tendenz der Zunahme am Südpol	leicht verlängert
4	ja	nein	mit den Jahren abnehmender Transport zu den Polen, vermutlich durch zunehmenden QBO Einfluss	deutliche Abnahme am Südpol	konstante Westphase zwischen 50 hPa und 30 hPa Höhe
8	ja	nein	mit den Jahren abnehmender Transport zu den Polen, vermutlich durch zunehmenden QBO Einfluss	deutliche Abnahme am Südpol	konstante Westphase zwischen 50 hPa und 20 hPa Höhe
2	nein	nein	Transport vorwiegend in die Nordhemisphäre	Abnahme am Südpol	nicht beeinflusst
2	ja	ja	Transport in beide Hemisphären	deutliche Abnahme am Südpol	leicht verlängert

Tab. 2: Simulationen zum Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf die dynamischen Prozesse der Stratosphäre mit dem Modell ECHAM5-HAM, welches lediglich mit einer Aerosolmikrophysik gekoppelt ist.

<b>Emission Mt S/Jahr</b>	<b>Strahlungs- kopplung</b>	<b>Einfluss auf PSC</b>	<b>Transport</b>	<b>Ozon</b>	<b>QBO Westphase</b>
<b>4</b>	ja	nein	Abhängig von der Phase der QBO: Höhere Sulfat-konzentrationen in der Südhemisphäre in der QBO Westphase als in der QBO Ostphase. In der Nordhemisphäre umgekehrt.	vorgegeben	deutlich verlängert zwischen 50 hPa und 30 hPa
<b>8</b>	ja	nein	normierte Sulfatkonzentration in der Nordhemisphäre geringer als in der 4 Mt S Simulation	vorgegeben	Konstante Westphase

## 1.5 Auswirkungen auf die Ozonschicht

### 1.5.1 Auswirkungen in Funktion der Injektionsrate

Abbildung 1.1a zeigt den Einfluss des Geoengineering auf die Ozonsäule der Stratosphäre in Abhängigkeit von der eingegebenen Menge Schwefeldioxid im zonalen und mehrjährigen Mittel. Dargestellt wird die Anomalie der stratosphärischen Ozonsäule relativ zum mehrjährigen Mittel des Kontrolllaufs ohne Geoengineering. Als Ozonsäule bezeichnet man die vertikal integrierte Menge Ozon, diese wird oft in ‚Dobson Units‘ (DU) angegeben: 100 DU entsprechen einer Säule von 1 mm bei 1 Atmosphäre Druck und einer Temperatur von 298.15 K. Schwefeldioxidinjektionsraten von 2, 4 und 8 Mt S pro Jahr wurden getestet, wobei die Menge im Sinne der Vergleichbarkeit mit Experimenten die in anderen Studien mit einer anderen Schwefelverbindung durchgeführt wurden, als Schwefelmassenäquivalent angegeben ist ( 2 Mt S entsprechen exakt 4 Mt SO<sub>2</sub> usw.). Diese Injektionsraten entsprechen der Größenordnung die sich in vorhergehenden Studien als notwendig erwiesen hatten um den Treibhauseffekt von anthropogenem Kohlendioxid in etwa auszugleichen.

Im mehrjährigen Mittel lassen sich folgende Eigenschaften des Einflusses des Geoengineering auf die Ozonsäule zusammenfassen:

- 1) Zonal lassen sich Bereiche der Zunahme und der Abnahme unterscheiden: (a) leichte Abnahme über dem Äquator, (b) leichte Zunahme in den mittleren Breiten, und (c) mehr oder weniger ausgeprägte Abnahme über den Polen, mit Ausnahme des 2 Mt-Laufs am Südpol.
- 2) Der Bereich der äquatorialen Abnahme breitet sich mit zunehmender Emissionsmenge tendenziell polwärts aus. Der polare Bereich der Abnahme vertieft sich mit zunehmender Menge, scheint jedoch bereits bei 4 Mt S pro Jahr ein Maximum zu erreichen.
- 3) Insgesamt sind die beobachteten Effekte, Zunahmen und Abnahmen, im Vergleich zur natürlichen inter- und intraannuellen Variabilität des stratosphärischen Ozons relativ gering (<10% Abnahme, Maximum am Südpol, <5% Zunahme, Maximum über den nördlichen gemäßigten Breiten).

Wie in Abbildung 1.1b ersichtlich, befindet sich am Ort der Eingabe am Äquator ein absolutes Maximum der stratosphärischen Aerosolsäule. Dieses nimmt in etwa proportional zur eingebrachten Sulfatmenge zu. Über den Subtropen und den gemäßigten Breiten befindet sich ein Minimum respektive ein sekundäres Maximum. Außerhalb des Äquatorbereichs ist das Verhältnis zwischen Injektionsrate und Aerosolmasse schwächer ausgeprägt: eine Vervierfachung der Eingabemenge von 2 auf 8 Mt entspricht lediglich einer Verdoppelung der Aerosolsäule. Hierbei handelt es sich um einen bekannten mikrophysikalischen Effekt (e.g., Niemeier et al., 2011).

Ein Vergleich der Abbildungen 1.1a und 1.1b zeigt, dass es zonal keine einfache Korrelation zwischen der Anomalie der Ozonsäule und der Aerosolmenge gibt. Insbesondere über dem Südpol, wo die Aerosolsäule teilweise ein absolutes Minimum erreicht, ist der relative Abbau des Ozons bei den 4 und 8 Mt-Läufen besonders ausgeprägt, während beim 2 Mt-Lauf das Ozon über dem Südpol sogar im Durchschnitt erhöht ist. Diese Umstände deuten auf das

Vorhandensein von komplexen, insbesondere chemischen und dynamischen Wechselwirkungen hin, die das Geschehen dominieren.

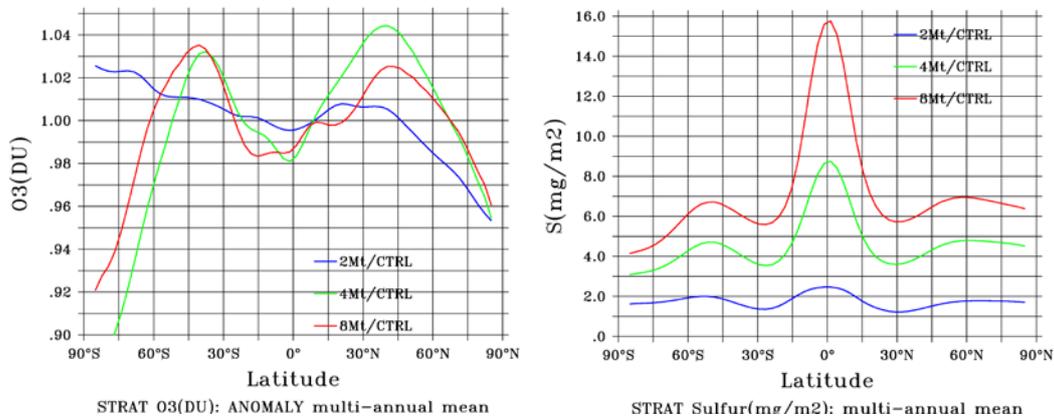


Abb. 1.1: (a) zonale Anomalie der Ozonsäule im Vergleich zum Kontrolllauf (links) und (b) vertikal integrierte Sulfatmasse der Aerosolphase (in mg/m<sup>2</sup>, rechts) im Jahresdurchschnitt der Jahre 2003-2006, 2004-2011 und 2003-2008, bei einer Injektionsrate von respektive 2, 4 und 8 Mt S pro Jahr.

### 1.5.2 Unterscheidung zwischen chemischen und dynamischen Prozessen

Zur Unterscheidung der Prozesse, die mit den Auswirkungen des stratosphärischen Geoengineering auf die Ozonschicht in Zusammenhang stehen, wurde eine Reihe von Experimenten durchgeführt, bei welchen jeweils ein prozessrelevanter Parameter verändert wurde:

- 1) der PSC-Lauf: bei diesem Lauf ist (a) die Strahlungskoppelung des Aerosols ausgeschaltet, und (b) wurde zusätzlich die Koppelung der polaren stratosphärischen Wolken (PSC) an den atmosphärischen Wasserdampfgehalt bewerkstelligt. Die Koppelung an den Wasserdampfgehalt hat sich im Nachhinein als vernachlässigbar herausgestellt. Aus diesem Grund dient dieser Lauf hauptsächlich dazu, die primär rein chemischen Effekte einzugrenzen.
- 2) der HEAT-Lauf: in diesem Lauf ist die Strahlungskoppelung eingeschaltet. Dieser Lauf dient dazu, im Vergleich zum Vorherigen den Einfluss der Strahlungseigenschaften des Aerosols zu quantifizieren.
- 3) der MICRO-Lauf: in diesem Lauf wurden die mikrophysikalischen Eigenschaften der festen PSC-Partikel in einer Weise verändert die sich an den Beobachtungen von Deshler et al. (1994) im Zusammenhang mit dem Ausbruch des Mt. Pinatubo im Jahr 1991 orientiert (siehe oben). Auf diese Weise soll eingegrenzt werden inwiefern das stratosphärische Geoengineering die Ozonschicht über die mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC beeinflussen könnte.

Diese Analyse wurde mit einer Injektionsrate von 2 Mt S pro Jahr bewerkstelligt. Der Grund für die Auswahl dieses Laufs basiert auf dem Umstand, dass die 4 und 8 Mt-Läufe einen ausgeprägten zusätzlichen Trend aufweisen, welcher durch die Auswirkungen auf die quasi biennale Oszillation (QBO) bedingt ist, der hier zur Unterscheidung der Prozesse soweit als möglich vermieden werden soll. Außerdem ist der 2 Mt-Lauf in dem Sinne besonders interessant, als dass er als einziger gegebenenfalls zu einer Zunahme des antarktischen Ozons

zu führen scheint. Die Auswirkungen der QBO werden in Kapitel 8 eingehend analysiert, welches hier im folgenden Abschnitt zusammengefasst ist.

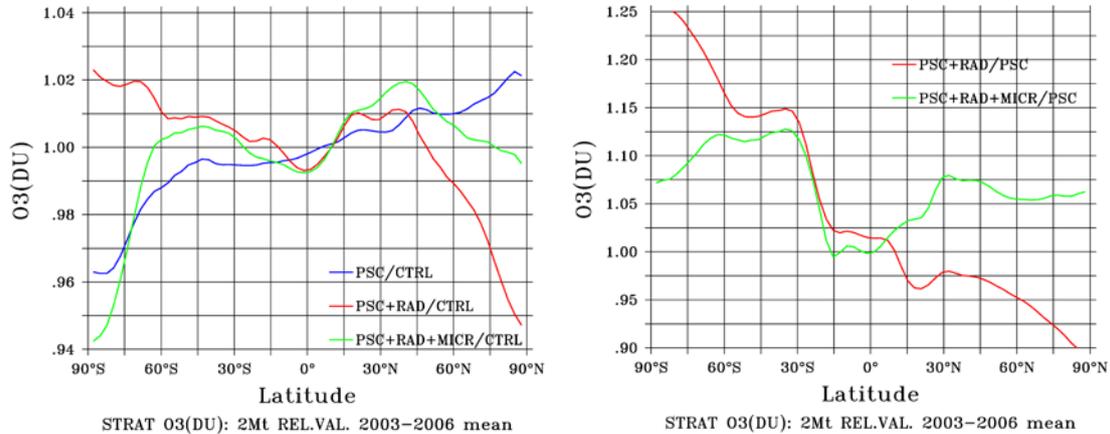


Abb. 1.2: Zonal gemittelte Anomalie der Ozonsäule relativ zum Kontrolllauf (a), und der vertikal integrierten Aerosolsulfatmasse relativ zum PSC-Lauf (b), im Jahresdurchschnitt der Jahre 2003-2006. Die Injektionsrate beträgt 2 Mt S pro Jahr.

Abb. 1.2 fasst die Auswirkungen der getesteten Prozessparameter auf die Ozonschicht und die Aerosolsäule in Analogie zu Abb. 1.1 zusammen. Mittels weitergehender Analysen (siehe Kapitel 7) lassen sich folgende Effekte unterscheiden:

- 1) PSC-Lauf: Die leichte Zunahme des Ozons über den gemäßigten Breiten beruht auf der Unterdrückung des  $\text{NO}_x$ -Abbauzyklus. Über dem Äquator bewirkt der  $\text{HO}_x$ -Abbauzyklus die leichte Abnahme des Ozons. Unter Ausklammerung der primären dynamischen Effekte der Stratosphäre würde das Geoengineering an den Polen tendenziell eine Abnahme des Ozons bewirken. Trotzdem ist eine gewisse Zunahme über sekundäre dynamische Effekte immer noch möglich, wie in unserem Beispiel über der Arktis angezeigt.
- 2) HEAT-Lauf: Die Hitzewirkung des Aerosols bewirkt einen Anhebungseffekt der Aerosolschicht über dem Äquator. Hierdurch erhöht sich die globale geoengineerte Aerosolmasse durch geringere Verluste in die Troposphäre. Die Auswirkungen auf das Ozon der tropischen und mittleren Breiten sind verhältnismäßig gering. Für das polare Ozon kommt es jedoch zu einer komplexen Auswirkung, die sich nur eingeschränkt deuten lässt. Es scheint so zu sein, dass die Hitzewirkung einen Effekt auf den südlichen Polarwirbel hervorruft, in dessen Folge der meridionale Transport bevorzugt über die südliche Hemisphäre hin stattfindet. Scheinbar infolge eines positiven Rückkoppelungseffektes, der auf dem Zusammenhang zwischen Aerosolhitzewirkung, Polarwirbel, PSC und Ozonchemie basiert, wird der Ozonabbau über der Antarktis reduziert. Im Umkehrereffekt wird die Ozonschicht über der Arktis vermehrt abgebaut.
- 3) MICRO-Lauf: In Analogie zum HEAT-Lauf haben die mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC nur geringen Einfluss auf das Ozon der mittleren und tropischen Breiten. Gleichwohl ist der Einfluss auf den Transport des Aerosols bedeutsam. Die durch den Hitzeeffekt erhöhte Aerosolmasse wird nun viel gleichmäßiger auf beide Hemisphären verteilt. Dies scheint wiederum eine Folge davon zu sein dass der erhöhte Ozonabbau durch die PSC über der Antarktis den südlichen Polarwirbel stabilisiert und durch die somit gefestigte Transportbarriere mehr Aerosol zum Transport über die Nordhemisphäre zur Verfügung steht.

Die zusätzliche Menge Aerosol würde infolgedessen im Umkehreffekt zum HEAT-Lauf den nördlichen Polarwirbel destabilisieren und somit in Kombination mit den veränderten Eigenschaften der PSC zu einer moderaten Abnahme des Ozonabbaus über der Arktis führen.

## **1.6 Auswirkungen des SRMs auf die Dynamik der Stratosphäre**

In diesem Abschnitt wird untersucht, welchen Einfluss die Sulfatmissionen auf die Dynamik, und damit rückkoppelnd auch auf den Transport der Spurenstoffe haben. Da das verwendete Modell keine Gasphasenchemie enthält, der Rechenaufwand wäre bei einer Simulation von 30 Jahren zu hoch gewesen, werden Rückkopplungen oder Verstärkungen dynamischer Einflüsse wie die winterliche Erwärmung durch absorbierendes Ozon oder Auswirkungen der polaren Stratosphärenwolken nicht berücksichtigt.

Die dazu durchgeführte Sensitivitätsstudie umfasst drei Simulationen:

- Kontrolllauf: ECHAM5-HAM Simulation mit Sulfathintergrundkonzentrationen aus natürlichen Quellen als einzige Emissionen,
- MT4: Schwefelemissionen von 4 Mt S/Jahr, kontinuierlich in eine Gitterbox in 60 hPa Höhe (ca. 19 km) am Äquator emittiert und
- MT8: wie MT4 jedoch mit Emissionen von 8 Mt S/Jahr.

### **1.6.1 Auswirkung des SRMs auf die dynamischen Prozesse in den Tropen**

Zunehmende Schwefelkonzentrationen bewirken eine zunehmende Erwärmung der unteren Stratosphäre durch Wechselwirkung der Sulfatschicht mit Strahlung im nahen Infrarot und längeren Wellenlängen. Diese lokale Temperaturerhöhung führt zu einem zusätzlichen Auftrieb. Diese aufwärtsgerichtete Vertikalbewegung bewirkt, vereinfacht gesagt, eine Abschwächung der QBO Abwärtsbewegung. Dadurch verlängern sich bei Berechnungen mit einem an ein allgemeines Klimamodell gekoppelten Aerosolmodell (ECHAM5-HAM) die Westwindphasen in der unteren Stratosphäre (Abbildung 1.3b und 1.3c). Bei Emissionen von 4 Mt S/Jahr verlängert sich die Periode der Schwingung auf 32 Monate bis hin zu 60 Monaten. Bei Emissionen von 8 Mt S/Jahr bildet sich zwischen 50 hPa und 25 hPa Höhe ein permanenter Westwind, sowie darüberliegend eine Ostwindregion aus. Die Frequenz der Schwingung und die vertikale Erstreckung des Westwindbereiches sind abhängig vom Modell und der gewählten Emissionshöhe. Die vertikale Erstreckung des Westwindbereiches hat Auswirkungen auf die Strömungsverhältnisse der Stratosphäre.

### **1.6.2 Dynamische Prozesse in den mittleren und hohen Breiten**

Es wurde gezeigt, dass die stratosphärische Sulfatschicht die Dynamik in den Tropen beeinflusst und zu starken Veränderungen der QBO führt. Um Auswirkungen der veränderten QBO auf dynamische Prozesse wie Wind- und Temperaturfelder zu finden, wird versucht, den Einfluss der QBO von dem der Erwärmung der Stratosphäre durch die Sulfatschicht zu unterscheiden. Beide sind nicht voneinander zu trennen und beeinflussen sich gegenseitig. Anders als in MT8, treten in MT4 sowohl eine Ost- als auch eine Westphase auf. Nimmt man an, dass die aerosolbedingte Erwärmung in beiden Phasen gleich ist, lassen sich durch Vergleich der beiden Phasen

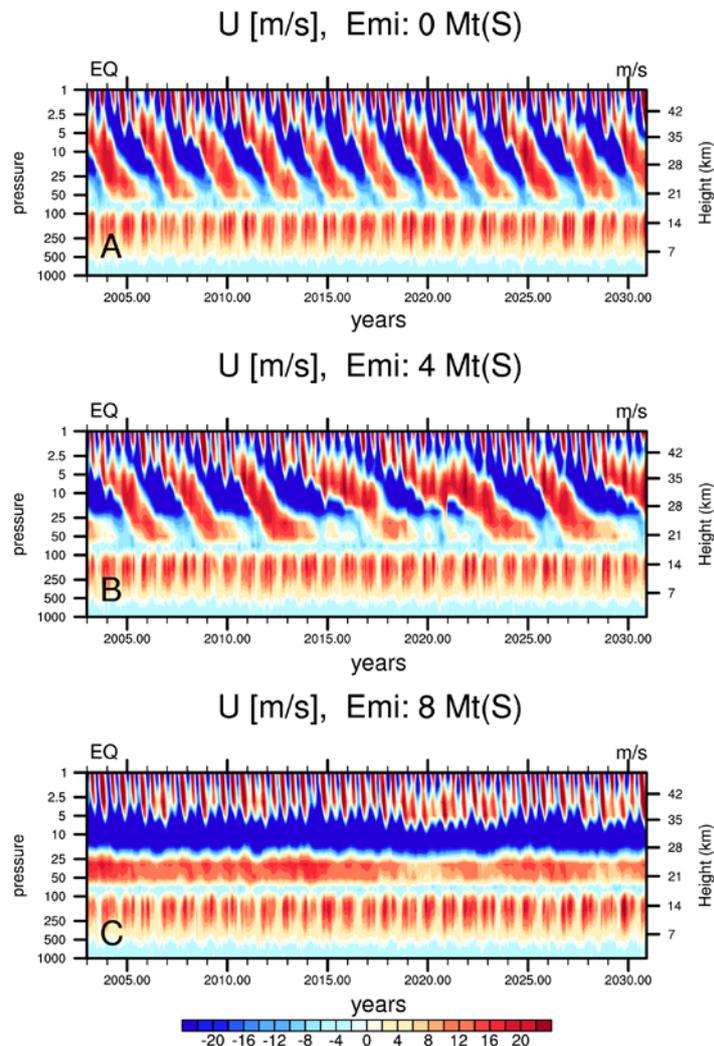


Abb. 1.3: Quasi biennale Oszillation bei verschiedenen Emissionsstärken: Ohne SRM (oben), mit Emissionen von 4 Mt S/Jahr (Mitte) und 8 Mt S/Jahr (unten). Mit zunehmender Emissionsstärke verlängert sich die Westphase in der Höhe von 50 hPa, bis hin zu einer konstanten Westphase. Blau abgebildet sind östliche Winde und rot westliche Winde.

Rückschlüsse auf deren unterschiedliche dynamische Effekte ziehen, um so die Unterscheidung zwischen rein dynamischen Auswirkungen und denen der erwärmten Stratosphäre zu ermöglichen.

Die wesentliche Veränderung im äquatorialen Zonalwind ist eine Verlängerung der Westwindphasen zwischen 25 hPa und 50 hPa in MT4, quasi die Ausbildung von ‚Westwindnasen‘, die in einen bleibenden Westwindjet in MT8 übergehen. Oberhalb von 25 hPa dominieren Ostwinde. Zur Unterscheidung der Phasen wird ein Kriterium gewählt, das besonders die ‚Nasen‘ der Westwindphase in 50 hPa erfasst:

- Phase 1: Westwind in 50 hPa (Zonalwind ( $u$ )  $> 5$  m/s) und Ostwind in 15 hPa ( $u < 5$  m/s).
- Phase 2: Ostwind in 50 hPa ( $u < 0$  m/s) und Westwind in 15 hPa ( $u > 5$  m/s).

Mit diesem Kriterium werden die Perioden der nicht ganz abwärts wandernden QBO zwischen 2015 und 2022 aus der Analyse herausgenommen (Abb. 1.3b).

Vergleichen wir jetzt Phase 1 gegen Phase 2, so ergibt sich folgendes Bild: Abnehmende Stärke des zonal gemittelten Westwindes im Kontrolllauf in der oberen Stratosphäre nördlich von 50° N im frühen Winter. Ein ähnliches Ergebnis ergibt die Simulation MT4, allerdings ist das Signal schwächer und weniger konsistent ausgebildet und zwischen 10 und 100 hPa kommt es zu einer leichten, nicht signifikanten Verstärkung des Westwindes.

Außerhalb der Tropen führen die zunehmenden Westphasen der QBO somit in dieser Studie zu einer Abschwächung des winterlichen antarktischen Polarwirbels. Das Ergebnis ist dabei vom Modell, der vertikalen Erstreckung der erwärmten Schicht in der Stratosphäre und der Emissionshöhe abhängig.

### 1.6.3 Auswirkungen auf den Spurenstofftransport

In den verschiedenen Phasen der QBO unterscheiden sich die Strömungsverhältnisse in den Tropen (Treppe und Hitchman, 1992). Abbildung 1 in Punge et al (2009) zeigt die Unterschiede schematisch: Polwärts gerichtete Strömung zwischen 15 hPa und 10 hPa in der Ostphase und äquatorwärts gerichtete Strömung in der Westphase. Die Vertikalbewegung ist stärker in der Westphase, wodurch Spurenstoffe dort stärker vertikal verteilt werden.

Abbildung 1.4 zeigt die Sulfatkonzentration in den zwei QBO Phasen als zonales Mittel gegen die Höhe aufgetragen; oben, Phase 1 (links) und Phase 2 (rechts), sowie darunter als Differenzen der Konzentration: als absolute Differenz (Phase 1 - Phase 2) (links) und relative Differenz (Phase 1 - Phase 2) / Phase 2 in % (rechts). Am Äquator nimmt die Konzentration in der zentralen Sulfatschicht in Phase 1 gegenüber Phase 2 um ca 10% ab, am oberen und unteren Rand nimmt sie hingegen durch die stärkere vertikale Ausbreitung in der Westphase zu. Die in Abbildung 1.4 (unten) überlagerten Isolinien sind Stromlinien der Stromfunktion. Sie stellen die Anomalie zwischen den Phasen dar und beschreiben die sekundäre Zirkulation, da die Differenzenbildung die Hauptströmung (Brewer Dobson Zirkulation) herausfiltert. Diese Sekundärzirkulation bildet sich um die zonalen Jets der QBO. Der Spurenstofftransport folgt den Stromlinien, bei positiven im Uhrzeigersinn und bei negativen dem Uhrzeigersinn entgegengesetzt.

In der unteren Stratosphäre (100 hPa bis 20 hPa) zeigt sich eine Verschiebung des hemisphärischen Transportes zwischen den Phasen (Abb. 1.4, links unten): In Phase 1 stärkerer Transport des Sulfates in die Südhemisphäre, in Phase 2 stärkerer Transport in die Nordhemisphäre mit jeweils um bis zu 20% erhöhten Konzentrationen. Diese Ergebnisse wurden ohne interaktive Kopplung an ein Chemiemodell berechnet. Daher sind Rückschlüsse auf andere Spurenstoffe nur schwer möglich, da diese eine andere Verteilung mit der Höhe aufweisen. Zudem sind mögliche Rückkopplungen durch Wechselwirkungen, z.B. mit Ozon, und dadurch bedingtem Einfluss auf die Temperatur nicht enthalten.

Die aufgezeigten Ergebnisse sind stark von der Emissionshöhe des Schwefels abhängig. Wird in größerer Höhe emittiert, so befindet sich die erwärmte Stratosphärenschicht in einer anderen Höhe und als Folge bildet sich der Westwindjet mit einer anderen vertikalen Erstreckung aus. Diese verursacht dann andere Wechselwirkungen mit dem winterlichen Polarwirbel. Eine Verstärkung oder Abschwächung des Polarwirbels hat über Troposphären-Stratosphärenaustausch Einfluss auf das Klima und Winterwetter in den mittleren Breiten.

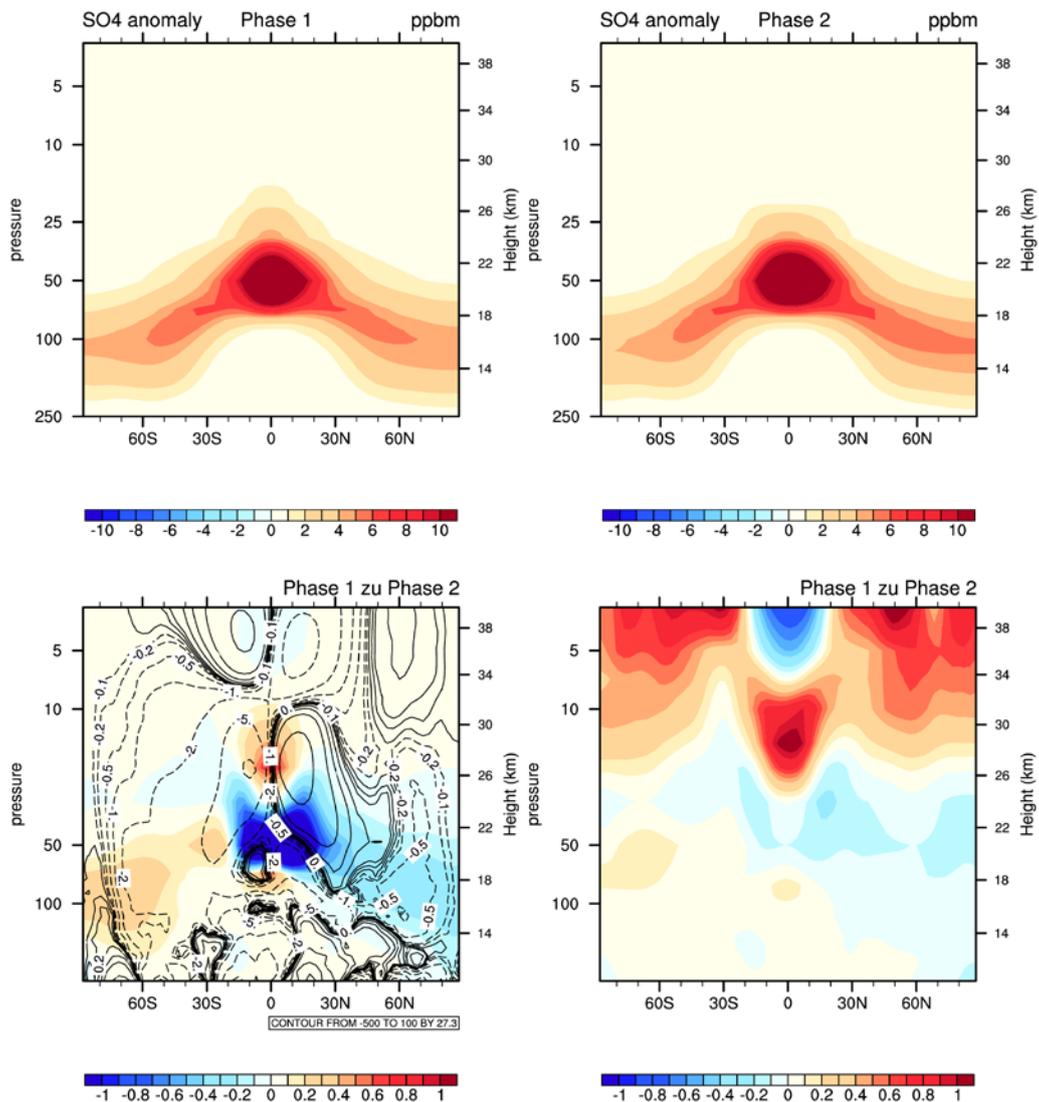


Abb. 1.4: 4Mt: Vertikalverteilung des zonalen Mittels der Konzentration (oben) in Phase 1 (links) und Phase 2 (rechts) und unten deren Differenzen als absolute Differenz [ppb] (links) und relative Differenz [%] (rechts). Zusätzlich ist die Anomalie der Stromlinien zwischen Phase 1 und Phase 2 (unten, links) abgebildet.

## 1.7 Schlussfolgerung

Ziel dieser Untersuchung ist die Quantifizierung der Auswirkungen des stratosphärischen Geoengineerings auf die globale Ozonschicht mit Hilfe von globalen Zirkulationsmodellen mit gekoppelter atmosphärischer Chemie und Aerosolprozessen. Die Modellresultate dieser Studie zeigen innerhalb des getesteten Injektionsratenintervalls von 2-8 Mt S pro Jahr einen relativ begrenzten Einfluss auf das stratosphärische Ozon. Die Resultate geben ein geographisch uneinheitliches Bild. Während über dem Äquator ein relativ geringfügiger Ozonabbau im unteren einstelligen Prozentbereich aufgrund des beschleunigten HOx-Zyklus auftritt, erfolgt in den mittleren Breiten gar ein geringfügiger Anstieg aufgrund des gehemmten NOx-Zyklus. Über den Polargebieten ergibt sich durch die Interaktion von chemischen und dynamischen

Prozessen ein ungleich komplizierteres Bild, welches von einem leichten Anstieg bis zu einer deutlichen Abnahme der Ozonsäule um bis zu 10% reicht. Insgesamt sind die Auswirkungen auf das polare Ozon von einer starken Tendenz der Asymmetrie der Nordhalbkugel gegenüber der Südhalbkugel geprägt.

Von Vulkanausbrüchen ist bekannt, dass es in deren Folge zu einer Abnahme des globalen sowie insbesondere des polaren Ozons kommt. Dieser Effekt konnte in dieser Studie zum stratosphärischen Geoengineering nur bedingt reproduziert werden. Dies könnte dadurch bedingt sein, dass die chemischen Voraussetzungen insofern verschieden sind, dass Geoengineering voraussichtlich nicht mit der Einbringung einer zusätzlichen Menge von Halogenen verbunden wäre. Zudem konnte in dieser Studie aufgezeigt werden, dass in Hinsicht auf das polare Ozon dem Ineinandergreifen sämtlicher beteiligter Prozesse in der Summe eine wesentliche Bedeutung zukommt. Im Bereich des außerpolaren Ozons werden chemische Prozesse tendenziell durch dynamische Effekte in geringem Maße verstärkt, und umgekehrt. In den Polargebieten dagegen werden vermehrt gegensätzliche Effekte simuliert. Bei Ausklammerung der Erwärmung der Stratosphäre durch das Aerosol und der Auswirkungen des Aerosols auf die mikrophysikalischen Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken (PSC), führen chemisch-dynamische Wechselwirkungen in Abhängigkeit von der Injektionsrate zu einer hemispärisch entgegengesetzten Wirkung auf das polare Ozon. Ein analoges Resultat der chemisch-dynamisch bedingten hemispärischen Asymmetrie wird erzielt, wenn die Strahlungseigenschaften des Aerosols berücksichtigt werden. Annahmen zur Veränderung der mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC unter dem Einfluss von Geoengineering führen ebenfalls zu einem hemispärisch klar kontrastierten Resultat. Unsere Analysen haben gezeigt, dass insbesondere der Beeinträchtigung des meridionalen Transports von ozonreicher Luft und Aerosolpartikeln, und deren Auswirkungen auf die Stabilität der Polarwirbel, und damit der Bildung von PSC, eine gewichtige Rolle zukommen könnte. Hier muss jedoch angefügt werden, dass angesichts der Komplexität des Zusammenspiels der die Ozonschicht beeinflussenden Faktoren genauere Aussagen zu den hier angeführten Erklärungsmustern noch weitergehender Studien bedürfen.

Ein weiteres wesentliches Ergebnis dieser Untersuchung ist die Auswirkung der Sulfatschicht auf die Dynamik der quasi-biennalen Oszillation (QBO). Mit ansteigender Schwefelinjektion wird die QBO in der tropischen Stratosphäre zunehmend beeinflusst. Zunehmende Schwefelkonzentrationen bewirken eine zunehmende Erwärmung der unteren Stratosphäre was, verkürzt gesagt, zu einem zusätzlichen Auftrieb führt. Diese aufwärtsgerichtete Vertikalbewegung bewirkt eine Abschwächung der QBO Abwärtsbewegung. Dadurch verlängern sich die Westwindphasen in der unteren Stratosphäre. Bei 4 Mt S/Jahr verlängert sich die Periode der Schwingung. Bei Emissionen von 8 Mt S/Jahr bildet sich zwischen 50 hPa und 25 hPa Höhe ein permanenter Westwind, darüber eine Ostwindregion. Unsere Modellresultate zeigen, dass bei einer Emissionshöhe von 60 hPa (ca. 20 km) der winterliche Polarwirbel in der Nordhemisphäre in der QBO Westwindphase abgeschwächt wird. In der unteren Stratosphäre (100 hPa bis 20 hPa) zeigt sich zudem eine Verschiebung des hemispärischen Transportes zwischen den Phasen der QBO mit jeweils um bis zu 20% geänderten Konzentrationen. Simulationen mit einer Emissionshöhe von 30 hPa (ca. 25 km) zeigen eine deutlich höhere vertikale Erstreckung der Westwindzone, was einen verminderten Transport von Sulfat und Ozon zu den Polen zur Folge hat, besonders bei Emissionen von 8 Mt

S/Jahr, und damit eine abnehmende Ozonkonzentration in der Stratosphäre der gesamten mittleren und hohen Breiten. Die hier simulierten Auswirkungen der Erwärmung der Stratosphäre durch Sulfataerosole auf die Dynamik, QBO und den Spurenstofftransport sind mit Unsicherheiten behaftet, da die Zeitreihen im Sinne einer statistisch sicheren Aussage relativ kurz sind, sowie ebenfalls eine gewisse Abhängigkeit der Resultate vom verwendeten Modell nicht auszuschließen ist. Sie zeigen jedoch sehr deutlich, dass eine Injektion von Schwefel einen erheblichen Eingriff in die Dynamik der Stratosphäre bedeutet.

Insgesamt ergibt sich somit in Bezug auf die Auswirkungen des stratosphärischen Geoengineerings auf die Ozonschicht ein sehr differenziertes Bild, welches die Komplexität des betreffenden Systems abbildet. Des Weiteren gibt es eine Reihe von Unsicherheiten und nicht in Betracht gezogene Faktoren, gegenüber welchen die Resultate dieser Studie relativiert werden müssen. Zum einen ist die Mikrophysik der PSC weitgehend unbekannt. Aufgrund von Beobachtungen im Rahmen von Vulkanausbrüchen erscheint es plausibel, dass das Geoengineering die mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC ebenfalls beeinflussen dürfte. Wir konnten in dieser Studie aufzeigen, dass die Veränderung der mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC das Potential eines entscheidenden Einflusses auf die Auswirkungen des Geoengineerings auf das Ozon besitzt. Nicht in Betracht gezogen wurde die Interaktion von Geoengineering und Vulkanausbrüchen, welche außer zusätzlichem Aerosol auch noch Halogene in die Atmosphäre einbringen würden. Da den Halogenen eine entscheidende Rolle beim Ozonabbau zukommt, und Aerosole den Halogenen die notwendige Reaktionsbasis zu ihrer Aktivierung bieten, könnten Vulkanausbrüche den Einfluss des Geoengineering auf die Ozonschicht maßgeblich verändern. Auch nicht in Betracht gezogen wurden Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehaltes durch Geoengineering aufgrund von physikalisch-technischen Voraussetzungen. Die Neubildung von Aerosolpartikeln in der Stratosphäre setzt das Vorhandensein einer gewissen Menge an Wassermolekülen voraus. Da die Stratosphäre u.a. durch sehr geringe Mengen an Wasserdampf gekennzeichnet ist, könnte Geoengineering mittels Sulfataerosol die Injektion einer gewissen Menge Wassers voraussetzen, welches seinerseits jedoch auch den HOx-Abbauzyklus des Ozons beeinträchtigen könnte, sowie die heterogene Aktivierung von Halogenen fördern könnte. Aus Beobachtungen von Ereignissen erheblicher troposphärischer Wasserdampfeinträge in die Stratosphäre ist bekannt, dass diese aufgrund nichtlinearer Prozesse zu beträchtlichem Abbau der Ozonschicht führen können.

Zusätzlich zu den Auswirkungen in der Stratosphäre – dem Gegenstand dieser Studie – wirkt sich das Geoengineering auf die klimatischen Bedingungen in der Troposphäre aus. Hier ist durch die Veränderung der Strahlungsbilanz in der Troposphäre und durch Wechselwirkungen zwischen Stratosphäre und Troposphäre mit signifikanten Veränderungen zu rechnen. Vorhergehende Studien deuten insbesondere auf regional signifikante Abnahmen des jährlichen Niederschlags hin. Aufgrund der Modellunsicherheiten und der fundamentalwissenschaftlichen Unbekannten einerseits, und der Komplexität der global auf unterschiedlichen Zeitskalen ineinandergreifenden Prozesse andererseits, werden sich die genauen Auswirkungen des stratosphärischen Geoengineerings ohne großskalige Langzeitexperimente nicht mit ausreichender Zuverlässigkeit quantifizieren lassen, die allerdings einer effektiven Implementierung des stratosphärischen Geoengineerings vorgreifen würden. Dieser letztlich unausweichliche Umstand, dass stratosphärisches Geoengineering sich

Untersuchung und Bewertung von Methoden zum Geo-Engineering, die die Zusammensetzung der Atmosphäre beeinflussen.

eigentlich erst mit dessen Umsetzung zuverlässig testen lässt, dürfte dessen Anwendbarkeit hinsichtlich der globalen Tragweite der bekannten Risiken entscheidend einschränken.

## 2 Summary

### 2.1 Introduction

Recently, so-called geoengineering, or climate engineering methods that aim at finding a technological fix to the consequences of global climate change have been increasingly discussed. Geoengineering serves as an umbrella term that actually covers two very different approaches (Royal Society, 2009). So-called Carbon Dioxide Removal (CDR) technologies would be intended to undo anthropogenic emissions of carbon dioxide, as these would be technologies that would actively remove carbon dioxide from the atmosphere. So-called Solar Radiation Management (SRM) methods follow the principle of a direct manipulation of the earth's radiation balance, as global cooling would be obtained via a reduction of the amount of solar radiation that would reach the earth's surface. There are multiple approaches as to how this should be obtained, among them large-scale brightening of marine clouds, mirrors in space and the creation of a reflective aerosol layer in the stratosphere. The ongoing debates on geoengineering have recently been summarized comprehensively by the Kiel Earth Institute at the instigation of the German Ministry for Education and Research (Rickels et al., 2011), and an assessment report has been issued under the assignment of the Royal Society in London (Royal Society, 2009).

This study investigates the consequences of stratospheric SRM (Budyko, 1977; Crutzen, 2006) to the dynamics and chemistry of the stratosphere. Apart from the expected lower costs with respect to mitigation, the method is thought to be highly effective (Royal Society, 2009). However, the method would also most evidently carry a high amount of risks, which is why in Crutzen's 2006 paper it was originally and exclusively stated as a last resort with respect to a runaway global warming scenario. In analogy to the emission of greenhouse gases, SRM is a global intervention into the global climate system. Notwithstanding, both actions would differ in terms of their spatial and temporal implications, and in consequence a geoengineered climate would always differ from a non-geoengineered one. Known implications of SRM to the climate system are changes to the global water cycle (Bala et al., 2008; Jones et al., 2010) and to global circulation patterns (Schmidt et al., 2012), as well as the depletion of the stratospheric ozone layer (Tilmes et al., 2009; Heckendorn et al., 2010; Aquila et al., 2014).

Sulphate aerosol is considered to be a reliable modality for the obtention of a reflective aerosol layer in the stratosphere. To this purpose, sulphur dioxide is to be released as a precursor gas into the stratosphere at a height of approx. 18-25 km. The oxidation of sulphur dioxide eventually yields sulphuric acid, which may in turn condense in combination with water vapour, from which process sulphate aerosol is obtained. Sulphate particles have reflective properties with respect to shortwave radiation, and may thus help reduce solar irradiance at the surface of the earth and thereby cool the planet. However, the reduced irradiance and the related changes to the energy balance of the troposphere also produce a tendency to a likewise reduction of global mean precipitation and to a modification of regional precipitation patterns (Jones et al., 2010; Niemeier et al., 2013).

Sulphate aerosol also has absorption properties with respect to near infrared and infrared radiation (Lohmann and Feichter, 2005). This property, the so to speak greenhouse gas property

of sulphate aerosol, induces a warming effect of the lower stratosphere that influences stratospheric circulation and transport of chemicals such as ozone. Moreover, the warming affects stratospheric ozone chemistry, both via gas and interphase (=heterogeneous) processes. Heterogeneous chemical processes occur at the surface of aerosol particles and of the droplets and crystals of polar stratospheric clouds (PSC), which clouds are known to play a key role in polar ozone depletion. The accurate simulation of the influence of stratospheric geoengineering on the ozone layer therefore requires the use of a global circulation model that catches the close interactions among aerosol dynamics, gas phase and heterogeneous chemistry and the local radiation balance.

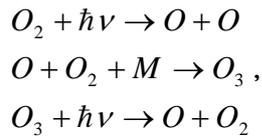
Volcanic eruptions may be seen as a natural, however incomplete, analogue to the geoengineering of the stratosphere with sulphate aerosol. As shown by empirical evidence, the 1991 Mount Pinatubo eruption in the Philippines was followed by both a tendency of the ozone layer to be depleted and a discernable slow-down of the quasi-biennial oscillation (QBO). Quite so, reminiscent of the El Niño Southern Oscillation, the QBO is an oscillating dynamical phenomenon within the climate system. It is characterised by periodical switches of height dependent zonal wind directions in the stratosphere, and related to certain stratospheric temperature patterns. In this respect, it appears likely that the influence of geoengineering on the QBO will in turn affect the stratospheric ozone layer.

## **2.2 Stratospheric Ozone Chemistry Interactions in a Nutshell**

### **2.2.1 Stratospheric Ozone Chemistry**

Among other things stratospheric ozone chemistry is distinct from tropospheric ozone chemistry via the relative absence of organic compounds. The resulting system is still a complex one that is characterised by a range of antagonistic reactions. Basically, stratospheric ozone chemistry may be divided into processes that occur within the gas phase and others that are related to aerosol or polar stratospheric cloud particles. The influence of geoengineering onto the ozone layer is due to the latter heterogeneous processes in the first place. Furthermore, distinction should be made between processes that occur on a global scale and others that occur primarily or exclusively within the polar areas. Polar ozone chemistry's specificity is rooted into certain principal chemical reactions of the gas phase on the one hand, and related to the presence of the polar stratospheric clouds, on the other hand. Polar stratospheric clouds occur exclusively within the polar vortex and have a decisive influence on polar ozone chemistry, most notably in terms of the formation of the so-called ozone hole during southern hemispheric spring.

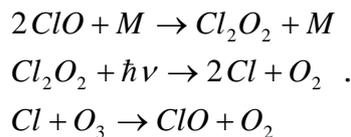
The stratospheric chemistry of the gas phase is marked by cycles. These are chemical reaction chains that rely on certain chemical compounds that remain eventually unaffected, in the sense that they take the role of both products and reactants. Ozone itself may be produced, depleted, or tend to remain unchanged by these cycles. In the latter circumstance, the chemical cycle is said to be a null-cycle with respect to ozone. Paradoxically, the main production cycle of stratospheric ozone, the so-called Chapman cycle, is itself a null-cycle:



where  $h\nu$  stands for the dissociation of ozone through ultraviolet radiation, and M represents an unspecified air molecule that takes the role of a reaction catalyst.

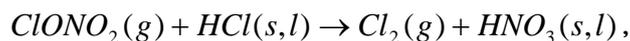
Within equilibrium, the net effect of the Chapman cycle is to neither produce nor deplete ozone. In the event that the chemical system is perturbed, for instance via a change in temperature, it will attempt to adapt to this circumstance via its moving towards a new equilibrium state, in the wake of which the individual concentrations of the involved chemicals are modified.

Gas phase ozone depletion is due to chemical mechanisms that as opposed to the null-cycles result in an unconditional net ozone depletion. The corresponding ozone depletion cycles are the NO<sub>x</sub>-cycle (involving NO<sub>2</sub> and NO), the HO<sub>x</sub>-cycle (OH and HO<sub>2</sub>), and the ClO<sub>x</sub>-cycle (ClO and Cl). Under the particularly cold conditions of the polar winter, ozone is depleted in the Arctic and the Antarctic via a particular variant of the ClO<sub>x</sub>-cycle:



The first reaction of the preceding cycle is a so-called three-body reaction. These reactions are special in the sense that their reaction rate is negatively correlated with temperature along with increasing molecule encounter probability.

Likewise, heterogeneous reactions play an important role in arctic ozone depletion. Chlorine radicals, which serve as an input to the ClO<sub>x</sub>-cycle, are produced via the following reaction in combination with the photolytical splitting of chlorine in the presence of sunlight:



where the g,s,l stand for the gas, solid, and liquid aggregate states, respectively.

We refer to Chapter 4 (in German) of this study, as well as to Seinfeld and Pandis (2001), for a more detailed description of stratospheric ozone chemistry.

### 2.2.2 Interactions among Stratospheric Aerosol, Polar Stratospheric Clouds and Ozone Chemistry

As was described above, stratospheric aerosol particles and polar stratospheric clouds play a central role in ozone chemistry via the heterogeneous reactions that occur at their surface. Moreover they serve as sinks to certain key chemicals in ozone chemistry, such as NO<sub>x</sub>, that may thus be removed from the atmosphere through them.

The stratospheric aerosol mainly consists of a binary solution of H<sub>2</sub>O and H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, into which other inorganic chemicals may dissolve. Beneath these purely liquid particles there is a limited quantity of liquid phase covered mineral particles. Mineral particles mainly originate from the troposphere. Their quantity is limited through sedimentation, which is more effective for these particles as they tend to be larger and denser, and thus heavier. The proportion of mineral

particles increases significantly in the context of volcanic eruptions that may inject material directly into the stratosphere on a more or less regular base. Quite so in analogy to stratospheric geoengineering, volcanic eruptions also enhance the amount of sulphate particles.

Polar stratospheric clouds (PSC) exclusively form under the particularly cold conditions of the polar winter, mainly over the Antarctic (see above). PSC are made of either solid or liquid particles, which are divided into categories according to their chemical composition. The influence of the PSC on ozone chemistry is considered to be decisive for the occurrence of the ozone hole. Stratospheric geoengineering could alter the properties of the PSC in certain ways. There is empirical evidence that volcanic eruptions may effectively change the microphysical properties of PSC (see, e.g., Deshler et al., 1994). As an analogue to volcanic eruptions, stratospheric geoengineering may in turn affect the properties of the PSC. This study attempts to assess the implications of this eventuality to the ozone layer.

Stratospheric aerosol may exert major influence onto ozone chemistry via a number of pathways:

- (1) Aerosol absorbs both shortwave and longwave radiation, which may lead to a relevant local heating effect that influences both the chemical reaction rates and the meridional transport of ozone.
- (2) Aerosol scatters shortwave radiation and thereby influences photolytic chemical reactions. Moreover, the aerosol induced scattering effect enhances the absorption of UV radiation by ozone, which adds to the local heating effect.
- (3) Heterogeneous reaction rates are correlated to the aerosol surface. This effect is in analogy to that of the PSC.
- (4) The water content of the geoengineered liquid aerosol could lead to an increase of the specific humidity of the stratosphere, which may in turn accelerate ozone depletion via the HOx-cycle significantly.
- (5) The capacity of the aerosol liquid phase to serve as a sink for chemicals is positively correlated to aerosol mass. The NOx-cycle could thus be substantially hampered by the geoengineered aerosol.
- (6) The aerosol influences the microphysical properties of the PSC, which may then in turn affect the formation of the ozone hole.

### **2.3 Dynamics of the Stratosphere**

The strongest temperature gradient in the troposphere is found between the tropics and poles. This differs from the conditions in the stratosphere, where the gradient from winter to summer pole is strongest. Another difference to the troposphere is the forcing of the circulation by waves, mainly Rossby and gravity waves, which give momentum to the stratosphere when dissipating. The following information are taken from an e-book of the NASA Goddard Space Center (NASA, 2000).

### 2.3.1 Regions of the Stratosphere

The stratosphere can be separated into four regions: tropics, middle latitudes (surf zone), polar vortex and lower stratosphere, which is the transfer zone to the troposphere.

The tropical stratosphere stretches from 20° N to 20° S. Highly energetic ultraviolet radiation creates ozone via photolysis. This region is the source of all stratospheric ozone, which is distributed globally by the Brewer-Dobson circulation (see next section). Dynamically most dominant is the quasi-biennial oscillation (QBO).

The middle latitudes of the stratosphere are also called surf zone. Here the planetary waves (Rossby waves) dissipate and transfer their energy, which is the driving force of the Brewer Dobson circulation. Additionally, ozone rich air masses from the equator meet air masses containing less ozone from the poles and mix via turbulent processes.

At high latitudes a region with strong zonal winds develops in the winter hemisphere, the polar night jet, also called polar vortex. The polar vortex is a large low pressure area caused by very low temperatures due to missing incoming solar radiation in winter. In the southern hemisphere the polar vortex is very stable, blocking air masses from being transported into the vortex. In the northern hemisphere the continents prevent a stable vortex and variability is much higher.

### 2.3.2 Brewer-Dobson Circulation

The large scale dynamics of the stratosphere is dominated by the Brewer Dobson circulation: upwelling air in the tropics, transport toward the poles and down welling air at polar latitudes. This large scale circulation distributes air masses and species globally. E.g. ozone is only created in the tropics and transported via the Brewer-Dobson circulation towards the poles. The Brewer Dobson circulation is manifested via cold down welling air in polar regions with the consequence of upwelling air in the tropics. However, the main forcing of the Brewer-Dobson circulation is caused by dissipation of waves.

### 2.3.4 Quasi-Biennial Circulation (QBO)

The domination process in the tropical stratosphere is the QBO. Within a height of 15 to 30 km the zonal wind direction changes from east to west with a period of 22 to 34 month. This phenomenon is found only in the inner tropics between 15° N and 15° S. Figure 2.3 a shows the QBO of the undisturbed stratosphere as calculated by ECHAM5-HAM. The QBO is also driven by the dissipation of waves.

## 2.4 Modell description and performed simulations

The simulations in this study were performed with the general global circulation model ECHAM5. We used the model in two versions:

1. Combined with the aerosol microphysical model HAM (ECHAM5-HAM) and
2. additional to the aerosol microphysics coupled to modules which simulate heterogenic chemistry and ozone gas phase chemistry in the stratosphere (EMAC).

Computation time was made available by Deutsches Klimarechenzentrum (DKRZ).

### 2.4.1 Model Description

The simulations were performed with the middle atmosphere model MAECHAM5 (Giorgetta et al., 2006) in a version with spectral truncation at wave-number 42 (T42) and 90 vertical layers up to 0.01 hPa. The GCM solves prognostic equations for vorticity, divergence, surface pressure and temperature. The vertical resolution of 90 layers allows the simulation of a QBO.

#### EMAC

The general circulation model EMAC (Joeckel et al, 2006) allows the simulation of the impact of a stratospheric sulfate layer on tropical and polar ozone. The model contains submodules for aerosol microphysics, gas phase chemistry and radiation, which are coupled to ECHAM5. Important for this study are the components for gas-phase chemistry MECCA (Sander et al, 2005), aerosol microphysics and chemistry GMXe (Pringle et al, 2011) and a module for the simulation of stratospheric polar clouds (PSC, Buchholtz, 2005). The reaction system of MECCA can be used for both troposphere and stratosphere. A comparison to measurements shows good results for the simulated ozone layer. This model was used for the sensitivity studies in chapter 7.

#### ECHAM5-HAM

The aerosol microphysical model HAM (Stier et al, 2005) is interactively coupled to the GCM ECHAM5. HAM calculates the formation of sulfate aerosol which includes nucleation, accumulation, condensation and coagulation processes. Details on sulfur chemistry and concentrations of prescribed gaseous species are described in Niemeier et al. (2009). The simulations include only sulfate aerosol. The model setup has been used in previous studies on the climatic impact of volcanic eruptions and to simulate the evolution of a volcanic cloud as well as within the EU Project IMPLICC (Niemeier et al, 2011, 2013). Comparisons to measurements show also good results (Niemeier et al, 2009; Toohey et al, 2011). This model was used for the simulations in chapter 8.

### 2.4.2 Performed Simulations

Previous studies show that quite different amounts of sulfate are necessary to compensate the radiative forcing of greenhouse gases. Mostly responsible are differences in simulated particle size and the regional distribution of the aerosols between the tropics and poles. Current estimates show that emissions between 1 and 10 Mt S per year (Rasch et al, 2008, Niemeier et al, 2013) are necessary. The concentrations of sulfate and sulfur are always given in equivalents of sulfur (S).

To study the dependency of the particle size distribution and the effects of geoengineered sulfate aerosol on the amount of injected SO<sub>2</sub> a series of numerical experiments was designed with continuous emissions of 2, 4, and 8 Mt(S)/year. Simulation with ECHAM5-HAM were performed for 30 years, for EMAC for 4 to 10 year because of the higher computation time requirement.

Table 1 and 2 give an overview on the performed simulations and a very short summary of the most important results.

Tab. 1: Impact of the stratospheric sulfur layer on stratospheric ozone. Simulations with EMAC with coupled chemistry and aerosol microphysics.

<b>Emissions Mt S/year</b>	<b>Radiation Coupling</b>	<b>Impact of PSC</b>	<b>Transport</b>	<b>Ozone</b>	<b>QBO West phase</b>
<b>2</b>	YEs	No	Increased Transport into the southern hemisphere	Increase in Antarctic region	Slightly prolonged
<b>4</b>	Yes	No		Decrease in Antarctic region	Continuous West-phase between 50 and 20 hPa
<b>8</b>	Yes	No	With time decreasing transport to the poles, probably caused by increasing impact of the QBO west phase	Decrease in Antarctic region	Continuous West-phase between 50 and 5 hPa
<b>2</b>	No	No	Transport mostly into northern hemisphere	Decrease in Antarctic region	Normal QBO
<b>2</b>	Yes	Yes	Transport into both hemispheres	Decrease in Antarctic region	Slightly prolonged

Tab. 2: Impact of stratospheric sulfur layer on dynamical processes in the stratosphere. Simulations with ECHAM5-HAM with aerosol microphysics only.

<b>Emissions Mt S/year</b>	<b>Radiation coupling</b>	<b>Impact of PSC</b>	<b>Transport</b>	<b>Ozone</b>	<b>QBO West phase</b>
<b>4</b>	Yes	No	Depends on the phase of the QBO: Increased sulfate concentrations in southern hemisphere during QBO west phase than during east phase. Opposite in the northern hemisphere.	Prescribed	Prolonged between 50 and 30 hPa
<b>8</b>	Yes	No	Relative sulfate concentrations (normalized) lower in the northern hemisphere than in 4 Mt (S)/year simulation	Prescribed	Continuous West phase

## 2.5 Implications to the Stratospheric Ozone Layer

### 2.5.1 Implications as a Function of the Injection Rate

Figure 1.1a depicts the implications of geoengineering to the stratospheric ozone column as a function of the injection rate of sulphur dioxide, on a zonal and multi-annual average, and relative to the control run without geoengineering. The ozone column designates the vertically integrated amount of ozone contained in the stratosphere per unit surface, which is usually expressed in ‘Dobson Units’ (DU). 100 DU coincide with a column of 1 mm under standard pressure (=1 atm) and temperature (=298.15 K) conditions.

Sulphur dioxide injection rates tested include 2, 4 and 8 Mt S per annum. The injection rates are given in sulphur equivalents, which is standard procedure in order to ensure comparability with other studies that might have been carried out with a different chemical, such as H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (2 Mt S coincide with 4 Mt SO<sub>2</sub>, etc.). These injection rates are within the order of magnitude of the current estimations of what is necessary to counterbalance the effects of anthropogenic greenhouse gas emissions in terms of global warming.

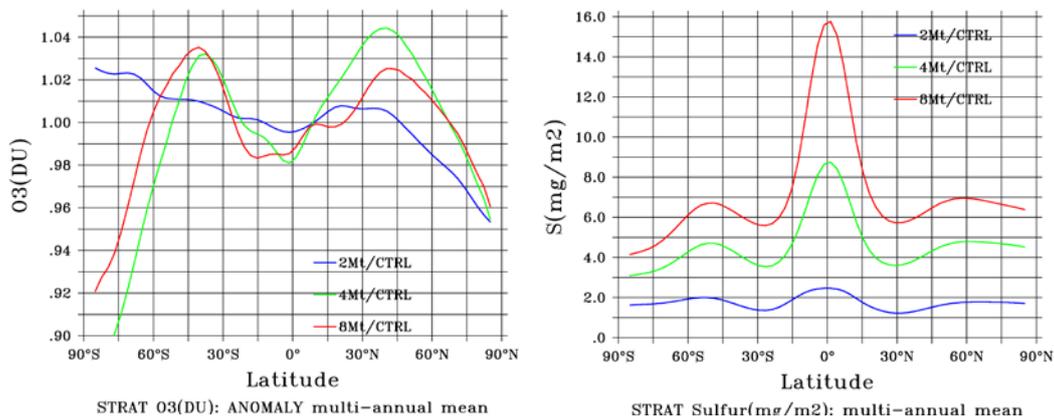


Fig. 2.1: (a) zonal anomaly of the ozone column in comparison to the control run (left) and (b) vertically integrated sulphur mass of the aerosol liquid phase (in mg/m<sup>2</sup>, right) averaged for years 2003-2006, 2004-2011 and 2003-2008, at injection rates of 2, 4 und 8 Mt S per annum, respectively.

The multi-annual implications of stratospheric geoengineering to the ozone layer may be summarised as follows:

- 1) Zonally, areas of increase and decrease may be distinguished: (a) slight decrease over the equator, (b) slight increase of the mid-latitudes, and (c) more or less pronounced decrease over the poles, with the exception of the 2 Mt run over the South Pole.
- 2) The area of equatorial decrease tends to widen with an increasing injection rate. The degree of decrease over the poles depends on the injection rate, however seems to have reached a maximum at an injection rate of 4 Mt S per annum.
- 3) All in all, the observed anomalies appear to be limited when compared to the inter- and intra-annual natural variability of the ozone layer (<10% decrease, maximal at South Pole, <5% increase, maximal at northern mid-latitudes).

The absolute maximum of the stratospheric aerosol mass column is situated over the equator, as shown by Figure 1.1b, thus coinciding with the location of its injection. In this location, the aerosol mass column is approximately proportional to the injection rate. There is an absolute minimum and a relative maximum over the subtropics and mid-latitudes, respectively. The relationship between the injection rate and the aerosol mass column is much less pronounced outside the equatorial area: a quadrupling of the injection rate corresponds roughly to a doubling of the aerosol column. This effect is well known and rooted into aerosol microphysics (see, e.g., Niemeier et al., 2011).

It becomes obvious that there is no simple correlation between the anomaly of the ozone layer and the aerosol mass column when Figures 1.1a and 1.1b are compared. Most notably, for the 4 and 8 Mt S runs ozone depletion tends to be particularly pronounced over the South Pole, where an absolute minimum of the aerosol column may be observed, whereas for the 2 Mt S run, the relationship appears to be reversed into a slight positive correlation. This non-linear property indicates that the ozone layer has to be driven by complex interactions of stratospheric chemistry and dynamics.

### **2.5.2 Distinction between Chemical and Dynamical Processes**

One of the objectives of this study is to disentangle the effects of the processes that determine the ozone layer. In this respect the following specific model experiments have been carried out, for each of which a certain process relevant parameter is modified:

- 1) the PSC run: this run shows (a) no coupling of the aerosol radiative properties to the local energy balance, and (b) coupling of the atmospheric water vapour content to the chemical composition of the polar stratospheric clouds (PSC). The latter coupling revealed to be irrelevant which is why this run mainly serves to assess the implications of the purely chemical effects in combination with the HEAT run (see next).
- 2) the HEAT run: within this run the aerosol radiative properties are fully coupled to the local energy balance. It serves to establish the implications of the aerosol radiative properties to ozone, in particular via stratospheric circulation.
- 3) the MICRO run: within this run the microphysical properties of the polar stratospheric clouds were modified as based on observations by Deshler et al. (1994) that were made in the context of the eruption of Mt. Pinatubo in 1991 (see above). This run serves to establish the potential role of the microphysics of the PSC in modifying the properties of the ozone layer in the wake of geoengineering.

These runs are carried out with an injection rate of 2 Mt S per annum. The reason for this relatively low value is rooted in the circumstance that the 4 and 8 Mt runs show a pronounced interannual trend, which in the sense of the distinguishability of the ozone affecting processes, should be avoided as much as possible. Furthermore, the 2 Mt run is the only to show the interesting feature of presenting an apparent anticorrelation of the antarctic ozone to stratospheric geoengineering, which should merit clarification. The observable trend within the 4 and 8 Mt runs appears to be caused by the implications of stratospheric geoengineering to the quasi-biannual oscillation (QBO). The implications to the QBO are analysed in detail in chapter 8 (in German), and summarised here within the following section.

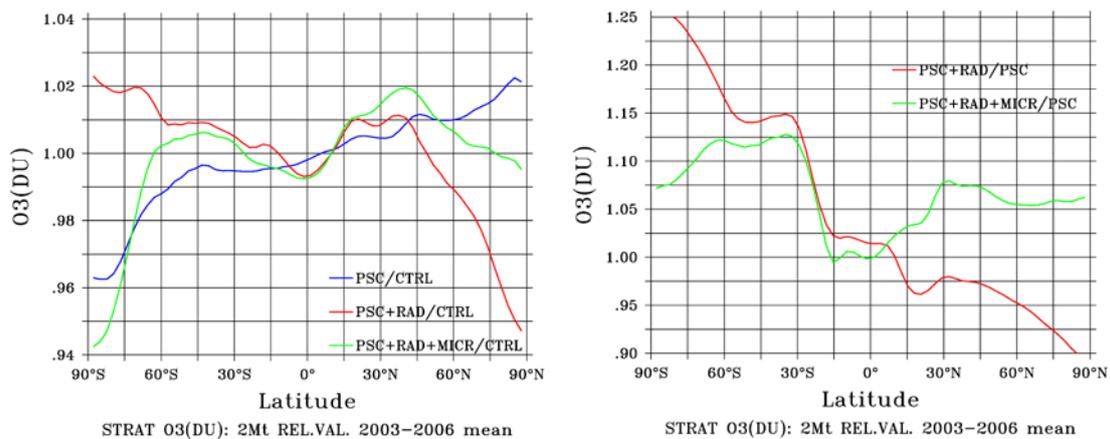


Fig. 2.2: Zonally averaged anomaly of the ozone column relative to control (a), and of the vertically integrated aerosol sulphur mass relative to the PSC run (b), average for years 2003-2006. The injection rate is 2 Mt S per annum.

Figure 1.2 outlines the implications of the tested process specific parameters to the ozone layer and the aerosol mass column, respectively, in analogy to Figure 1.1. The following effects may be distinguished (more thorough analysis is provided in chapter 7, in German):

- 1) PSC run: The slight increase of ozone over the mid-latitudes is caused by the relative suppression of the NO<sub>x</sub>-cycle. The slight decrease of ozone over the equator is caused by an enhanced HO<sub>x</sub>-cycle. Stratospheric geoengineering would tend to cause a depletion of the polar ozone layer in the absence of the aerosol heating effect. Nevertheless, a slight enhancement, via secondary circulation effects, is still possible, as depicted for the North Pole.
- 2) HEAT run: The heating effect of the aerosol causes an uplift of the aerosol layer over the equator, which in turn produces an increase of the global aerosol burden via a reduction of losses towards the troposphere. The implications for the tropical and mid-latitude ozone layer are limited. Polar ozone, however, shows a complex range of effects that may not be readily explained. It seems that the heating effect of the aerosol has an effect on the southern polar vortex, in the wake of which meridional transport towards the southern hemisphere is enhanced. Reduced ozone depletion over the Antarctic appears to be the result of a positive feedback cycle, involving the aerosol heating effect, the polar vortex, the PSC, and finally ozone chemistry. Conversely, ozone depletion over the Arctic appears to be enhanced as a result of a competition effect between the two hemispheres for aerosol and ozone.
- 3) MICRO run: the microphysical properties of the PSC show only limited influence on the ozone layer of the tropics and the mid-latitudes in analogy to the HEAT run. Nevertheless, a substantial effect on meridional transport may be distinguished as the increased aerosol burden is much more evenly distributed over both hemispheres. Again, this seems to be related to the antarctic polar polar vortex, which in contrast to the HEAT run appears to be stabilised via the PSC. The enhanced transport barrier inhibits transport over the southern hemisphere, such that more aerosol becomes available for transport over the northern hemisphere. The joint effect of the modified PSC and the strengthened polar vortex is to deplete the antarctic ozone layer substantially. Conversely, the additional amount of aerosol over the arctic would

tend to weaken the northern polar vortex, which in combination with the modified microphysical properties of the PSC would lead to a limited inhibition of ozone depletion.

## 2.6 Impact of SRM on the Dynamics of the Stratosphere

In this chapter we determine the impact of sulfur emissions on the dynamic of the stratosphere and, as a feedback process, also on the transport of species. Due to computational time constrains the simulations had to be performed without gas phase chemistry. Therefore, we did not include any feedback or enhancement process caused by the absorption of long wave radiation by ozone in winter, neither the impact of the polar stratospheric clouds on the polar vortex.

We performed three simulations, each over a period of 30 years:

- Control: ECHAM5-HAM simulation with sulfate background emissions only,
- MT4: Sulfur emissions of 4 Mt S/year, emitted continuously into one grid box at the equator in a height of 60 hPa (about 25 km) and
- MT8: as MT4 but with emissions of 8 Mt S per year.

### 2.6.1 Impact of SRM on Dynamical Processes in the Tropics

Increasing sulfate concentrations cause increased heating in the lower stratosphere by the absorption of long wave radiation and radiation in the near infrared. One consequence of this heating is an increased vertical motion in the tropical stratosphere. This vertical upwelling causes a lowering of the QBO downward motion and therefore, a prolongation of the QBO west phase of the zonal wind (Figure 2.3 b and 2.3 c). With emissions of 4 Mt S per year the period of the oscillation is prolonged between 32 and 60 month. With emissions of 8 Mt S/year the zonal wind is forced into a permanent west phase in a height between 50 hPa and 25 hPa and above into an east phase. The period of the oscillation depends on the emission height and is also model dependent. The vertical extension of the east phase jet has consequences on the dynamics of the stratosphere.

### 2.6.2 Impact of SRM on Dynamical Processes in the Middle and High Latitudes

We showed that the heating of the stratospheric sulfur layer has strong impacts on the dynamic of the tropics and on the oscillation of the QBO. To see impacts of the modified QBO on dynamical processes outside of the tropics, we tried to separate the impact of the heating of the sulfate layer from the impact of the modified QBO. Both influence each other. But different to MT8, we still simulate in MT4 a QBO east and west phase. Assuming that the impact of the heated aerosol layer is similar in both phases, we can get information on the impact of the modified QBO on the dynamics by comparing these two phases.

The most important change in the zonal wind at the equator is the prolongation of the west phase between a height of 25 hPa and 50 hPa, more or less the development of west wind noses (Figure 2.3 b), which develop into a permanent west phase jet for MT8. Above 25 hPa easterly wind is dominating. In order to differ between these QBO phases we choose a criteria for the composites which is designed to catch the noses of the west phase at 50 hPa:

- Phase 1: Zonal west wind ( $u$ ) in 50 hPa ( $u > 5$  m/s) and east phase in 15 hPa ( $u < 5$  m/s)

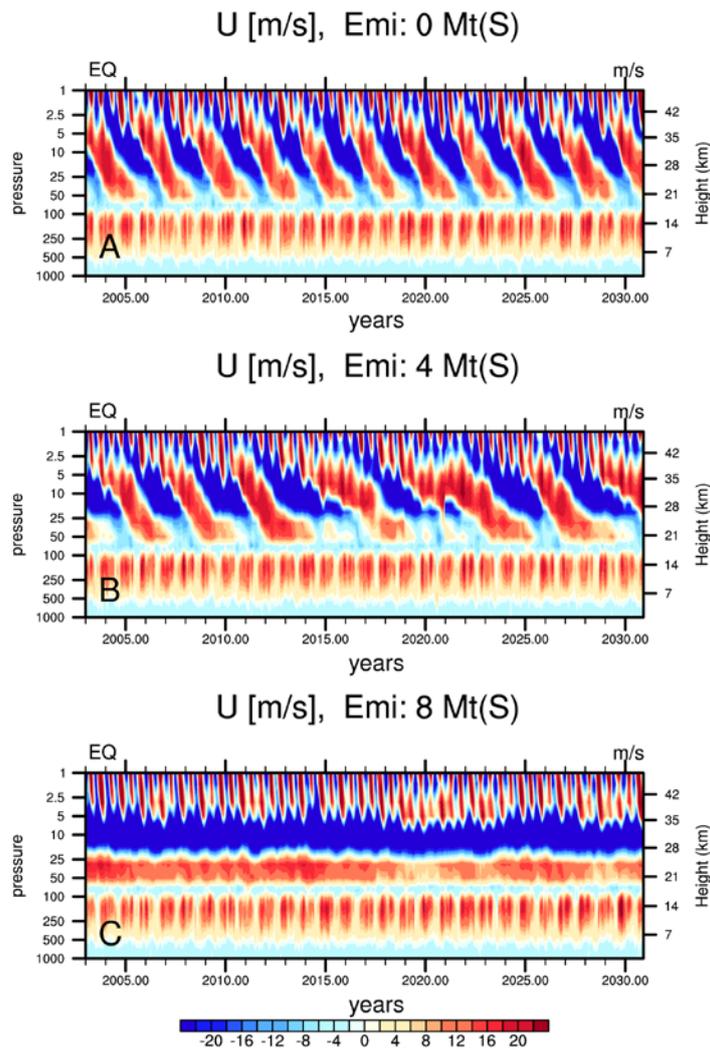


Fig. 2.3: Zonal mean of zonal wind close to the equator. Quasi biennial circulation for different emission strength: without SRM (A) emissions of 4 MtS/year (B) and emissions of 8 MtS/year. With increasing emission strength the period of the west phase is prolonged.

- Phase 2: Zonal east phase in 50 hPa ( $u < 0$  m/s) and west phase in 15 hPa ( $u > 5$  m/s).

Using this criteria, we filter QBO phases where the downward propagating west phase of the QBO does not reach 50 hPa in the years 2015 and 2022 (Figure 2.3 b).

Comparing now phase 1 and phase 2, we get the following picture: Decreasing velocity of the zonally averaged zonal wind of the control simulation north of  $50^\circ$  N in the upper stratosphere in the early winter. MT4 gives a similar result but with a smaller and a less consistent developed signal. Between 10 and 100 hPa we simulate a small but not significant increase of the polar vortex in December.

We conclude from this results, that the increase in time of west phases at the equator causes a decrease of the velocity of the polar vortex in winter in the northern hemisphere. However, this result depends on the model, the vertical extension of the zone of westerly wind at the equator, which is also a function of the emission height.

### 2.6.3 Impact on Transport of Species

During east and west phase of the QBO the general transport of species is different (Treppe and Hitchmann, 1992). Punge et al (2009) shows these differences in a overview plate: stronger pole ward flow between 15 hPa and 10 hPa within an east phase and stronger equator ward flow within the west phase. The vertical motion is also increased in the west phase of the east phase, causing a stronger vertical mixing of the species.

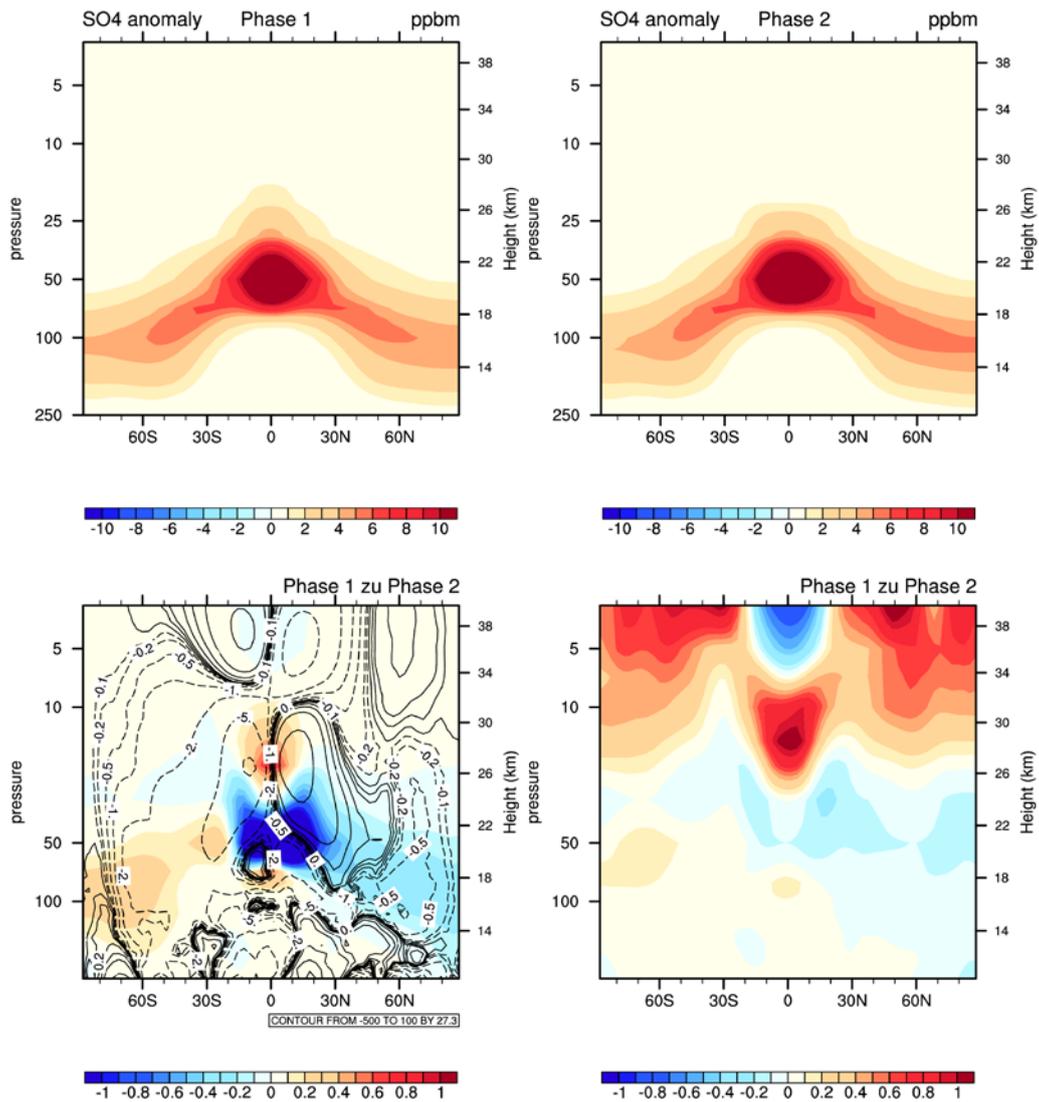


Fig. 2.4: 4Mt vertical distribution of the zonally averaged sulfate concentration (top) in phase 1 (left) and phase 2 (right). Bottom: Anomaly between phase 1 and phase 2 as absolute difference [ppb] (left) and relative difference (phase 1 – phase 2 / phase 2) in % (right). Isolines show the anomaly of stream function

Figure 2.4 shows the zonal mean of the sulfate concentration during the two phases defined in Section 2.5. Sulfate is plotted against pressure height. Top: Phase 1 (left) and Phase 2 (right) and Bottom: total difference of phase 1 minus phase 2 (left) and relative difference (phase 1 – phase 2 / phase 2) in % (right). Compared to phase 2, the concentration in phase 2 decreases in the central part of the sulfate layer by –10% but increases above and below due to the stronger

vertical mixing in the west phase. Figure 1.4 (bottom, left) shows also isolines of the stream function as an anomaly between the two phases, highlighting the secondary circulation of the QBO, which develops around the main jets of the QBO. The transport of species follows the isolines of the stream function, as the clock goes for positive values and counter clock wise for negative values.

In the lower stratosphere (100 hPa to 20 hPa) we find a shift in the hemispheric transport between phase 1 and 2 (Figure 2.4, bottom): In phase 1 the transport towards the southern hemisphere is increased, in phase 2 the transport towards the northern hemisphere with an increase of the concentration of 20%. These simulations do not include a gas phase chemistry. Therefore, it is difficult to draw a conclusion for other species, especially as these species show a different distribution with height. Additionally, feedback processes caused by changes in the ozone concentration are also not included.

## 2.7 Conclusion

This study makes use of global circulation models with coupled chemistry and aerosol processes to qualify and quantify the implications of stratospheric geoengineering to the global ozone layer. The model results reveal relatively limited implications to stratospheric ozone within the tested range of sulphur injection rates of 2-8 Mt S per annum. The results depict a geographically disparate picture. An accelerated HO<sub>x</sub>-cycle depletes tropical ozone moderately to a degree of a couple of percent, whereas the mid-latitudes experience a slight increase of the ozone column via the NO<sub>x</sub>-cycle. The polar areas show a far more complex picture, reaching from a slight increase to a considerable depletion of up to 10%, which is due to the effective complex interaction of chemical and dynamical processes. Furthermore, the response of the polar areas is marked by a strong tendency to a hemispherical asymmetry.

Volcanic eruptions are known to be related to a depletion of the ozone layer on a global scale, and in the polar areas in particular. With respect to geoengineering, this effect was only partially reproduced within this study. This circumstance is probably due to the fact that chemical conditions are different for geoengineering, as it may not be expected to be related to an increase of the amount of halogens in the stratosphere. Halogens are believed to be key to ozone depletion in the wake of volcanic eruptions. Moreover, the results of this study suggest that the reaction of polar ozone to geoengineering is the result of the interaction of a multitude of processes. Outside the polar areas, chemical processes generally produce an effect that slightly enhances the one by stratospheric dynamics, and vice versa. The situation is quite different within the polar areas, for which both strong positive feedbacks as well as antagonistic effects could be observed. It is found that chemical-dynamical interactions lead to hemispherically opposite effects when the radiative properties of the aerosol and its potential influence on the microphysics of the polar stratospheric clouds (PSC) are neglected. The taking into account of the aerosol radiative properties appears to lead to a quite similarly asymmetrical albeit inverted picture. Assertions about the influence of geoengineering on the microphysics of the PSC also produce a hemispherically contrasted result. Moreover, the results depend both qualitatively and quantitatively on the sulphur injection rate. Our analysis suggests that effects to the meridional transport of aerosol and ozone, and repercussions to the stability of the polar vortices, and thus to the formation of PSC, are key to the understanding of the implications of stratospheric geoengineering to polar ozone. Given the high degree of

complexity that characterises the combination of these factors, the explanations that were provided for the phenomena that were observed herein most probably require further investigations in order to be considered as robust.

In this study stratospheric geoengineering was found to have considerable influence on the quasi-biennial oscillation (QBO). The QBO appears to be progressively affected with an increasing injection rate. Sulphur aerosol induces a warming effect within the lower stratosphere, which implies additional uplift over the tropics. The additional rising of air masses causes the QBO downward motion to be inhibited, thus leading to a tendency for extended west phase periods of the QBO in the lower stratosphere. Whereas the west phase is merely extended at an injection rate of 4 Mt S per annum, it literally freezes at 8 Mt S per annum at pressure levels between 50 and 25 hPa. The permanent freeze out of the lower west wind area is completed by an area of permanent east winds on its top. Furthermore, sulphur injections at a pressure level of 60 hPa (approx. 20 km) seem to be related to a weakening of the northern hemisphere polar vortex. Switches between the phases of the QBO affect the hemispheric distribution of meridional transport to the extent that the stratospheric aerosol mass concentrations are modified by up to 20% at levels between 100 and 20 hPa. Simulations at an injection height of 30 hPa (approx. 25 km) show a pronounced vertical extension of the west wind layer, which appears to inhibit meridional transport of ozone and sulphate aerosol, particularly at an injection rate of 8 Mt S, such that the ozone column is reduced over the entire mid and high latitudes. The effects found in relationship with the influence of stratospheric warming to the dynamics, the QBO, and the transport of chemicals and aerosol are related to uncertainties in connection with relatively short simulation periods and a certain propension to model specific results. Nevertheless, these effects testify to the fact that geoengineering would massively interfere with stratospheric circulation.

Altogether, stratospheric geoengineering produces a very differentiated picture in terms of its implications to the ozone layer, which reflects the degree of complexity of multiple process interaction. Moreover, the results need to be relativised against a certain number of uncertainties and factors that have not been taken into account. As such, the microphysics of PSC remain largely unknown. However, as based on observations that were made in the context of volcanic eruptions it appears plausible that geoengineering would just as well influence the microphysical properties of the PSC. We were able to show that within the limits of the effects of geoengineering to the microphysics of the PSC that we assumed, these would have the potential to substantially affect the implications of geoengineering to the ozone layer. We did not investigate as to how the joint effects of geoengineering and a major volcanic eruption would add up. Volcanic eruptions would not only enhance the stratospheric aerosol layer, they would also quite specifically inject an additional amount of halogens into the stratosphere. The ozone depletion efficiency of the halogens would be further enhanced via the heterogeneous halogen activation reactions on the surface of the volcanic and geoengineered aerosol combined. If added to an already geoengineered stratosphere, volcanic eruptions may therefore significantly alter the implications of geoengineering to the ozone layer. Neither did we consider the implications of geoengineering to the water vapour content of the stratosphere. Nucleation of sulphate aerosol requires the presence of a sufficient amount of water vapour. The stratosphere is characterised by typically very low amounts of water vapour. Efficient particle formation may thus quite well require the injection of an additional amount

of water, which in turn might affect ozone depletion via the HO<sub>x</sub>-cycle and via enhanced halogen activation due to the increase of particle size. It is known from episodes of large-scale inclusion of moist tropospheric air into the stratosphere that these may lead to massive ozone depletion.

In addition to its effects in the stratosphere – which is the subject of this study – geoengineering would also have implications to the climatic conditions in the troposphere. These are expected to arise through the modified radiation balance in the troposphere, as well as through the relationship between tropospheric and stratospheric dynamics. In particular, previous studies point to a substantial reduction of global mean precipitation. The precise implications of stratospheric geoengineering may not at all be quantifiable with sufficient confidence without large scale experiments on grounds of model uncertainties on the one hand, and fundamental scientific unknowns on the other. In this context, it needs to be understood that large scale experiments would effectively be indistinguishable from geoengineering in terms of their effects, and would thereby anticipate an implementation of geoengineering, especially if carried out on a longer time scale, which they would have to be in the sense of a comprehensive testing. The combination of the facts that geoengineering may not at all be thoroughly tested without implementation and that it is related to a number of known risks in the context of a considerably complex system, should be sufficient quantity to preclude its desirability to a very large extent under almost any circumstance.

### 3 Einleitung

In letzter Zeit wurden vermehrt sogenannte Geoengineering Methoden diskutiert, welche sich zum Ziel setzen die Folgen des globalen Klimawandels technologisch in den Griff zu bekommen. Anders als bei der Emission von Treibhausgasen handelt es sich somit beim Geoengineering um eine absichtliche Beeinflussung des globalen Klimasystems. Der Überbegriff Geoengineering (alternativ wird auch der Begriff Klimaengineering verwendet) vereinigt zwei sehr unterschiedliche Ansätze. Sogenannte Carbon Dioxide Removal (CDR) Technologien sollen helfen, die anthropogenen Emissionen von Kohlendioxid sozusagen rückgängig zu machen, indem Kohlendioxid der Atmosphäre auf technischem Wege entzogen werden soll. Beim CDR sind wiederum sehr diverse Methoden in Diskussion, so z.B. einerseits Methoden wie die globale Ozeandüngung, die einen massiven Eingriff in das Ökosystem der Ozeane darstellen würde, oder auch das massenhafte Aufrichten von Luftfilteranlagen, welche das Problem der definitiven Lagerung des entzogenen Kohlendioxids mit sich bringen würde. Sogenannte Solar Radiation Management (SRM) Methoden verfolgen den Ansatz der direkten globalen Manipulation der globalen Strahlungsbilanz, wodurch eine globale Abkühlung durch die Reduktion der kurzwelligen Einstrahlung am Erdboden erreicht werden soll. Entsprechende SRM Methoden sind insbesondere die großskalige Modifikation der Strahlungseigenschaften der marinen Wolken, Spiegel im All sowie das Einbringen einer reflektierenden Aerosolschicht in die Stratosphäre. Eine Bestandsaufnahme der Debatte zum Geoengineering wurde vom Kiel Earth Institute im Auftrag des Bundesministeriums für Bildung und Forschung herausgegeben (Rickels et al., 2011), sowie von der Royal Society in London in Auftrag gegeben (Royal Society, 2009).

In diesem Forschungsvorhaben werden die Auswirkungen des stratosphärischen SRM (Budyko, 1977; Crutzen, 2006) auf die Stratosphäre untersucht. Neben den im Vergleich zur Mitigation vermuteten geringen Kosten bietet diese Methode eine voraussichtlich hohe Effektivität (Royal Society, 2009). Nachteil dieser Methode sind jedoch die hohen Risiken, weshalb sie nach Crutzen (2006) ursprünglich ausschließlich als Notfallszenario für den Fall eines außer Kontrolle geratenen Klimawandels vorgesehen war. SRM stellt, ebenso wie die Freisetzung von Treibhausgasen, einen Eingriff in das globale Klimageschehen dar. Allerdings unterscheiden sich beide Prozesse durch ihre räumlichen und zeitlichen Eigenschaften. Als Folge wird sich ein durch SRM beeinflusstes Klima immer von einem Klima ohne Geoengineering unterscheiden, selbst wenn in beiden Fällen z.B. eine identische globale Mitteltemperatur in Bodennähe resultieren sollte. Diese Unterschiede im globalen und regionalen Klima sollen näher quantifiziert werden. Bekannte Auswirkungen des SRMs auf das Klima sind Veränderungen im hydrologischen Zyklus (Bala et al., 2008; Jones et al., 2010), Änderungen der globalen Zirkulation durch die Verringerung des troposphärischen Temperaturgradienten zwischen Pol und Äquator (Schmidt et al., 2012), sowie der Abbau der stratosphärischen Ozonschicht (Tilmes et al., 2009; Heckenorn et al., 2010, Aquila et al., 2014).

Die am meisten in Betracht genommene Technik zur Erzeugung einer reflektierenden Aerosolschicht in der Stratosphäre ist die Erzeugung von flüssigen Sulfataerosolen. Dazu soll  $\text{SO}_2$  als Vorläufergas in die untere Stratosphäre (ca. 18 bis 25 km Höhe) eingebracht werden. Durch Oxidation und der Kondensation von Schwefelsäure und Wasser werden Sulfataerosole gebildet, welche kurzweilige Strahlung reflektieren und so die solare Einstrahlung am Boden

reduzieren. Stratosphärische Sulfataerosole reflektieren und streuen nicht nur kurzwellige Strahlung, zusätzlich absorbieren sie im nahen Infrarot und im Bereich langwelliger Strahlung (Lohmann and Feichter, 2005). Die verminderte solare Einstrahlung am Erdboden führt zu einer Reduktion des mittleren globalen Niederschlags und zu regional veränderten Niederschlagsmustern (Jones et al., 2010; Niemeier et al., 2013). Diese Effekte wurden auch für andere Geoengineeringtechniken simuliert (Schmidt et al., 2012; Tilmes et al., 2013) und sind uns aus dem Kontext von Vulkaneruptionen bekannt (Trenberth et al., 2007; Timmreck et al. (2012)).

Die Absorption langwelliger Strahlung, der Treibhauseffekt der Sulfate, führt zu einer Erwärmung der unteren Stratosphäre, welche die Zirkulation der Stratosphäre und somit den Transport des eingebrachten Schwefeldioxids bzw. der Sulfataerosole beeinflusst. Hinzu kommt eine direkte und indirekte Wechselwirkung mit stratosphärischem Ozon durch die Gasphasenchemie, sowie mikrophysikalische Prozesse an der Oberfläche der Aerosole (Seinfeld und Pandis, 2006). Sowohl die Oberfläche des Aerosols als auch dessen Strahlungseigenschaften sind nicht nur eine Funktion der Massenkonzentration, sondern sind auch von der Teilchenanzahldichte und der Größenverteilung des Aerosols abhängig. Erste Studien zur Modellierung des Einflusses einer stratosphärischen Sulfatschicht auf die globale Energiebilanz gingen teilweise von konstanter Teilchenzahl und -größenverteilung aus (Rasch et al., 2008, Robock et al., 2008, Tilmes et al., 2009). Studien mit aerosolmikrophysikalischen Modellen konnten den Einfluss der Aerosoldynamik auf die Größenverteilung und damit auf die Lebenszeit und die Strahlungseigenschaften des Aerosols aufzeigen (Heckendorn et al., 2009; Pierce et al., 2009; Niemeier et al., 2011; English et al., 2012). Die Studie zur Evaluierung von Chemie-Klimamodellen (CCMVAL, chemistry climate model evaluation study, Eyring et al., 2010) gibt Aufschluss über die Relevanz der Aerosoldynamik zur Simulation des Ozonabbaus als Folge von Vulkanausbrüchen. Mit Blick auf das Ziel dieses Forschungsvorhabens ist es daher notwendig, ein globales Zirkulationsmodell zu verwenden, das die Wechselwirkungen zwischen Aerosoldynamik, der Chemie der Gasphase und der Aerosoloberfläche sowie der lokalen Strahlungsbilanz in ihrer Gesamtheit darstellt.

Vorherige Studien zum Ozonabbau durch eine stratosphärische Sulfatschicht erfolgten teilweise unter stark vereinfachenden Annahmen. Tilmes et al. (2008) gaben feste Aerosolgrößenverteilungen vor. Heckendorn et al. (2009) berechneten Aerosolkonzentration und Oberflächendichte in einem 2d-Modell mit Aerosolmikrophysik, welche dann an ein dreidimensionales Zirkulationsmodell mit einem gekoppelten Modul der Atmosphärenchemie übergeben wurden. Auswirkungen auf die Zirkulation können aufgrund der Größenabhängigkeit der Strahlungseigenschaften mit einer festen Aerosolgrößenverteilung nur bedingt simuliert werden, während Wechselwirkungen zwischen Aerosol, Ozon und Zirkulation bei einer Entkoppelung der Mikrophysik nur eingeschränkt abgebildet werden.

Die Wechselwirkung zwischen stratosphärischem Sulfataerosol und polarem Ozon beschränkt sich nicht auf die am Aerosol stattfindenden chemischen Prozesse. Polarer Ozonabbau erfolgt hauptsächlich in Beziehung zu den polaren stratosphärischen Wolken (polar stratospheric clouds, PSC). Die Partikel der PSC können sowohl flüssig als auch fest sein und werden aufgrund ihrer chemischen Komposition klassifiziert. Partikel vom Typ I enthalten neben Wasser hauptsächlich Salpetersäure (Typ Ia, kristallisiert), können aber auch vermehrt Schwefelsäure (Typ Ib, flüssig) enthalten. Zusätzlich besteht ein Teil der Aerosole hauptsächlich

aus gefrorenem vereistem Wasser (Typ II). Es wird angenommen, dass Partikel des Typs Ib infolge der Aktivierung von stratosphärischem Aerosol entstehen. Die Entstehung der Partikel der Typen Ia und II ist komplexer und ist teilweise noch unbekannt (CCMVal, Eyring et al., 2010).

Eine natürliche, wenn auch unvollständige Parallele zum Geoengineering mit einer künstlich erzeugten Sulfataerosolschicht sind Vulkaneruptionen. Beobachtungen nach dem Ausbruch des Pinatubos 1991 auf den Philippinen zeigen eine Verlängerung der Phase der quasi biennalen Oszillation (quasi biennial oscillation, QBO) in der tropischen Stratosphäre. Bei der QBO handelt es ähnlich wie bei El Nino, um ein dynamisch oszillierendes Phänomen im Erdsystem, bei welchem die typische zonale Strömungsrichtung in der Stratosphäre in unregelmäßigen, jedoch annähernd biennalen, zeitlichen Abständen in Funktion der Höhe umschlägt. Die QBO konnte in diversen Studien mit typischen lokalen Temperaturmustern der Stratosphäre in Verbindung gebracht werden. Des Weiteren wird ein Einfluss auf das Wettergeschehen der Troposphäre vermutet. Simulationen der Prozesse nach Vulkanausbrüchen, z.B. Pinatubo, mit vertikal hoch aufgelösten Modellen geben Hinweise auf eine Verlängerung der Westwindphase der QBO. Der Einfluss einer stratosphärischen Sulfatschicht auf die Dynamik der Stratosphäre wird in dieser Studie mit einer hohen vertikalen Modellauflösung durchgeführt, welche eine explizite Simulation der QBO ermöglicht.

Dieser Bericht ist wie folgt strukturiert. In Kapitel 4 wird die Gasphasenchemie rund um das stratosphärische Ozon beschrieben, die aerosolmikrophysikalischen Prozesse, die zur Bildung des stratosphärischen Sulfates beitragen und die Bildung und Chemie der polaren stratosphärischen Wolken. Für die Dynamik der Stratosphäre wichtige Vorgänge, wie z.B. Brewer Dobson Zirkulation und Polarwirbel werden in Kapitel 5 erläutert. Genauere Angaben zu den verwendeten Modellen sind in Kapitel 6 aufgeführt, wie auch die Simulationen dort näher beschrieben werden. In Kapitel 7 wird ausführlich der Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf die stratosphärische Ozonkonzentration und dessen räumlich Verteilung dargelegt. Kapitel 8 widmet sich im Speziellen den Auswirkungen auf dynamische Prozesse der Stratosphäre, insbesondere auf die QBO.

## 4 Ozonchemie im Zusammenhang mit stratosphärischem Geoengineering

Die Bildung des stratosphärischen Ozons resultiert aus einer Vielzahl von Einzelprozessen sowohl chemischer als auch physikalischer Natur, welche komplex miteinander vernetzt sind. In diesem Kapitel sollen die wichtigsten Prozesse anschaulich zusammengefasst werden. Stratosphärisches Ozon spielt eine wesentliche Rolle in der Gasphasenchemie. Entsprechend werden wir zunächst versuchen, die Ozonchemie als alleiniges System darzustellen, mit vereinzelt Referenzen zum stratosphärischen Aerosol und den polaren stratosphärischen Wolken. Im zweiten Abschnitt werden wir das Aerosol und die stratosphärischen Wolken eingehender betrachten, sowie deren Zusammenhang mit der stratosphärischen Ozonchemie im Kontext des stratosphärischen Geoengineerings herleiten.

### 4.1 Stratosphärische Ozonchemie

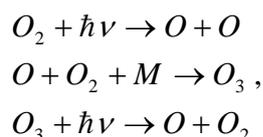
In diesem Abschnitt wird die stratosphärische Ozonchemie der Gas- und Flüssigphase übersichtlich zusammengefasst. Für eine ausführlichere Beschreibung verweisen wir auf Seinfeld und Pandis (2001).

Die stratosphärische Ozonchemie unterscheidet sich von der Ozonchemie der Troposphäre im Wesentlichen durch die Abwesenheit von organischen Verbindungen. Das resultierende System ist dennoch nicht-linear und daher gekennzeichnet durch sich gegenseitig beeinflussende Reaktionen. Im Wesentlichen lässt sich die stratosphärische Ozonchemie in Prozesse unterteilen welche ausschließlich in der Gasphase stattfinden, sowie solche, die das Vorhandensein einer Flüssigphase benötigen. Der Einfluss des Geoengineering auf die stratosphärische Ozonschicht findet primär über die letzteren sogenannten heterogenen Prozesse statt. Des Weiteren muss zwischen Prozessen unterschieden werden, welche global stattfinden, und solchen, die spezifisch für die polare Ozonchemie sind. Die polare Ozonchemie unterscheidet sich von der globalen zum einen durch bestimmte chemische Reaktionen der Gasphase, die das Geschehen dominieren, und zum anderen durch polare stratosphärische Wolken, welche innerhalb des Polarwirbels einen entscheidenden Einfluss auf die Ozonchemie haben.

#### 4.1.1 Reaktionen der Gasphase

##### Der Chapman-Zyklus

Die Bildung des stratosphärischen Ozons erfolgt über den sogenannten Chapman-Zyklus, welcher im Gleichgewicht eine stabile, den lokalen Temperatur- und Photolyseraten entsprechende Ozonkonzentration ausbildet:



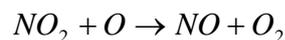
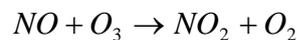
wobei  $h\nu$  für die photolytische Dissoziation bei spezifischer Wellenlänge, und M für ein nicht-spezifisiertes Luftmolekül steht, das die Rolle eines Katalysators einnimmt. Die photolytischen Reaktionen des Chapman Zyklus erfolgen im ultravioletten (UV) Bereich des Sonnenlichts.

Die Photolyseraten nehmen mit zunehmender UV-Strahlung entsprechend zunehmender Höhe und zunehmendem Zenitwinkel der Sonne zu. Folglich besteht die Tendenz, dass die Ozonkonzentration in der oberen Stratosphäre über den Tropen am höchsten ist. Da der Chapmanzyklus jedoch auch eine entsprechende Abbaureaktion beinhaltet, welche mit der Temperatur intensiviert wird, wird das Ozon mit zunehmender Höhe kurzlebiger. Die höhere Effektivität der Abbaureaktion dominiert das Geschehen ab einer bestimmten Höhe, wodurch die Ozonkonzentration ab dieser Höhe wieder abnimmt. Unterhalb des Maximums erhöht sich die durchschnittliche Lebenszeit der Ozonmoleküle, weshalb es tendenziell über größere Strecken transportiert werden kann. Das Zusammenspiel dieser Faktoren bewirkt, dass Ozon sich größtenteils in der unteren Stratosphäre über den Tropen bildet und sich anschließend, der Brewer-Dobson Zirkulation folgend, global verteilt. Ozon der mittleren Stratosphäre weist zwar ein höheres Mischungsverhältnis auf, besitzt jedoch aufgrund der geringen Dichte der Luft lediglich einen sekundären Einfluss auf die Ausbildung der gesamten stratosphärischen Ozonsäule.

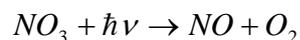
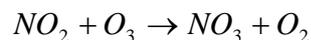
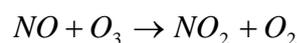
Der Chapman-Zyklus besitzt sowohl Quellfunktion als auch Senken. Daneben gibt es noch eine Reihe von weiteren chemischen Zyklen, die ausschließlich als Senke fungieren. Diese verringern die stratosphärische Ozonkonzentration und verändern aufgrund ihrer spezifischen Eigenschaften auch das vertikale Ozonprofil.

#### **Der NO<sub>x</sub>-Zyklus**

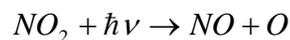
Als NO<sub>x</sub> bezeichnet man in der Atmosphäre die Summe von NO und NO<sub>2</sub>. Diese Substanzen leisten neben der Quellfunktion den wohl wichtigsten Beitrag zur Ausbildung der stratosphärischen Ozonschicht. Der NO<sub>x</sub> Abbauzyklus besteht eigentlich aus 2 Elementen, die folgendermaßen dargestellt werden können:



und:



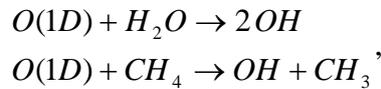
Der NO<sub>x</sub>-Zyklus wird durch folgende Reaktion ausgebremst, die zu diesem Zyklus im chemischen Wettbewerb steht:



Hierbei handelt es sich um einen sogenannten Nullzyklus, welcher gleich dem Chapman-Zyklus zugleich als Quellfunktion als auch Senke dient. Die Photolyse des NO<sub>2</sub> führt zur Bildung eines freien Sauerstoffradikals welches zur Ozonbildung beiträgt, während der NO<sub>x</sub>-Zyklus zum Abbau von Ozon führt. Dieser doppelten Eigenschaft des NO<sub>x</sub> werden wir im Folgenden noch mehrmals begegnen.

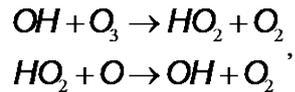
#### **Der HO<sub>x</sub>-Zyklus**

Als HO<sub>x</sub> wird die Summe von OH und OH<sub>2</sub> bezeichnet. Im Gegensatz zu NO<sub>x</sub> handelt es sich hierbei um extrem kurzlebige Radikale, welche sich aus der Photolyse von Ozon und anschließender Reaktion mit Wasser und Methan ergeben:

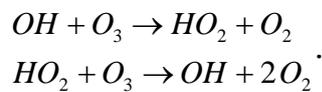


wobei O(1D) für den sogenannten ersten angeregten Zustand des Sauerstoffradikals steht.

Der HO<sub>x</sub>-Zyklus bezeichnet wiederum zwei eigentliche Reaktionsfolgen:

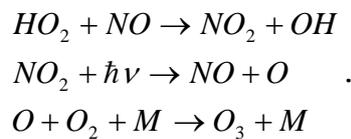


und:



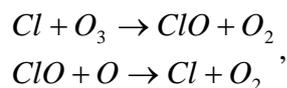
Aufgrund seiner photolytischen Abhängigkeit ist der HO<sub>x</sub>-Zyklus lediglich tagsüber aktiv. Des Weiteren ist er im Wesentlichen auf die untere Stratosphäre begrenzt in der sehr viel mehr Feuchte vorhanden ist (vgl., Tilmes et al., 2009).

Der HO<sub>x</sub>-Zyklus wird wiederum durch die Beteiligung von NO<sub>x</sub> in seiner Effektivität eingeschränkt:

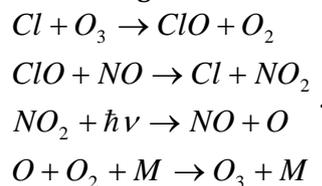


### Der ClO<sub>x</sub>-Zyklus

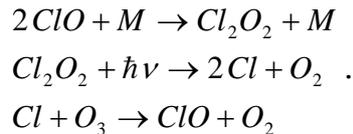
Als ClO<sub>x</sub> wird die Summe von Cl und ClO bezeichnet. Der ClO<sub>x</sub>-Zyklus setzt sich aus folgender Reaktionsfolge zusammen:



Der ClO<sub>x</sub>-Zyklus wird wiederum gleich dem NO<sub>x</sub>- und HO<sub>x</sub>-Zyklus durch die Photolyse von NO<sub>2</sub> in seiner Effektivität begrenzt, welche in folgendem Nullzyklus beteiligt ist:



Der ClO<sub>x</sub>-Zyklus ist in Bezug auf das globale Ozon die dominante Form des Ozonabbaus unter Beteiligung von Chlorradiakalen. Unter den sehr kalten Bedingungen an den Polen ist folgende zyklische Abbaureaktion dominant, welche wir zur Unterscheidung im Folgenden als Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-Zyklus bezeichnen:



Bei der ersten Reaktion dieses Zyklus handelt es sich um eine sogenannte Dreikörperreaktion, deren Reaktionsrate mit zunehmender Dichte und abnehmender Temperatur mit höherer Wahrscheinlichkeit der Molekülbegegnung zunimmt. Diese Reaktion stellt die dominierende Senke des polaren Ozons dar, welche für die Ausbildung des Ozonslochs in relativ geringer Höhe verantwortlich ist.

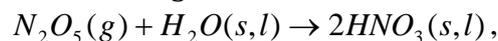
ClO und NO<sub>2</sub> bilden in der Gasphase die sogenannte Reservoirspezies ClONO<sub>2</sub>. Chloratome sind unter dieser Form chemisch gebunden und stehen für den ClO<sub>x</sub>-Zyklus nicht mehr zur Verfügung. Als Folge seiner Eigenständigkeit kann dieser Prozess den Ozonabbau unter Umständen vollkommen verhindern, für den Fall, dass sämtliches ClO<sub>x</sub> an NO<sub>2</sub> gebunden wäre. Im Umkehrfall kann die Unterbindung dieses Prozesses zu einem sehr effektiven Ozonabbau führen für den Fall das aus bestimmten Ursachen kein NO<sub>2</sub> zu Verfügung stünde. Diese Umstände involvieren heterogene Prozesse, die nun beschrieben werden sollen.

#### 4.1.2 Heterogene Reaktionen

##### Assimilation von NO<sub>x</sub> und ClO<sub>x</sub> in die Aerosolphase

NO<sub>2</sub> kann in der Gasphase mit OH zu HNO<sub>3</sub> reagieren, während Cl mit CH<sub>4</sub> zu HCl reagieren kann. Beide Produkte sind über den physikalischen Prozess der Dissolution in der Aerosolflüssigphase löslich, und können somit der Gasphase entzogen werden. Sowohl HNO<sub>3</sub> als auch HCl sind chemisch relativ stabil, und werden aus diesem Grund hauptsächlich durch physikalische Prozesse der Stratosphäre entzogen. Bei HNO<sub>3</sub> und HCl handelt es sich in diesem Sinne nicht um Reservoirspezies, sondern um definitive Senken. HCl kann jedoch aus der Aerosolphase heterogen gelöst werden, wie weiter unten beschrieben ist.

HNO<sub>3</sub> kann sich in der Atmosphäre auch chemisch an der Aerosoloberfläche bilden und in die Aerosolphase integriert werden, durch folgende Reaktion:



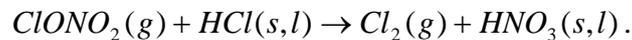
wobei die Indizes g,s,l für die entsprechenden Aggregatzustände gasförmig, fest und flüssig stehen. N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> bildet sich in der Gasphase aus NO<sub>2</sub> und NO<sub>3</sub>, wobei letzteres, wie bereits gesehen, ein Produkt des NO<sub>x</sub>-Zyklus ist.

Im Zusammenhang mit polaren stratosphärischen Wolken, insbesondere solche des Typs Ia und II, wird HNO<sub>3</sub> in großer Menge dauerhaft in der Aerosolphase gebunden. Es steht somit weder für den NO<sub>x</sub>-Zyklus noch zur Ausbildung der Reservoirspezies ClONO<sub>2</sub> zur Verfügung. Das Absinken der polaren stratosphärischen Wolken führt zur sogenannten Denitrifikation der polaren Stratosphäre, welche die Ausbildung des Ozonslochs begleitet. Bei Wiedereinsetzen der Sonnenstrahlung überwiegt die große Menge an zur Verfügung stehendem ClO<sub>x</sub> gegenüber dem unterdrückten NO<sub>x</sub>-Zyklus und führt zu einem schnellen Ozonabbau.

Da der globale Ozonabbau hingegen vom NO<sub>x</sub>-Zyklus dominiert wird führt, die Assimilation von NO<sub>x</sub> und ClO<sub>x</sub> in der Reservoirspezies global gesehen eher zu einer Zunahme der stratosphärischen Ozonsäule.

## Heterogene Freisetzung von Cl<sub>2</sub>

Das in der Reservoirspezies ClONO<sub>2</sub> enthaltene ClO<sub>x</sub> und NO<sub>x</sub> kann in der Gasphase photolytisch freigesetzt und den entsprechenden Abbauzyklen wieder zugeführt werden. In der polaren Stratosphäre ist jedoch insbesondere folgende heterogene Reaktion im Zusammenhang mit polaren stratosphärischen Wolken vorherrschend:



Im Zusammenhang mit dem weiter oben beschriebenen Entzug von NO<sub>x</sub> in Form von HNO<sub>3</sub> aus der Stratosphäre, wird durch diese Reaktion die Denitrifikation komplettiert, während der Entzug von ClO<sub>x</sub> zumindest teilweise wieder rückgängig gemacht wird, sodass das in der Atmosphäre vorhandene Chlor nun insgesamt in der Form von ClO<sub>x</sub> und Cl<sub>2</sub> vorliegt. Bei Wiedereinsetzen der Sonnenstrahlung nach dem Polarwinter wird das freigesetzte Cl<sub>2</sub> zu Cl-Radikalen photolysiert, und somit dem gleichfalls wiedereinsetzenden ClO<sub>x</sub>-Zyklus zugeführt. Diese Prozesse sind gleich der Bildung der Reservoirspezies ClONO<sub>2</sub> eigenständig, da sie nicht mit den Abbauzyklen in explizitem Zusammenhang stehen. Aus diesem Grunde handelt es sich vom Prinzip her um potentiell sehr effektive Prozesse.

## 4.2 Wechselwirkung zwischen stratosphärischem Aerosol, polaren Wolken und Ozonchemie

### 4.2.1 Stratosphärisches Aerosol

Gleich der Ozonchemie, ist das Aerosol der Stratosphäre gekennzeichnet durch die relative Abwesenheit von organischen Verbindungen. Stratosphärisches Aerosol besteht chemisch vornehmlich aus einer binären H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> Lösung in welche andere anorganische Substanzen, hauptsächlich HNO<sub>3</sub> sowohl physikalisch als auch chemisch (siehe oben) gelöst werden. Neben diesen rein flüssigen Partikeln gibt es in geringerem Maße mineralische Partikel, die im Allgemeinen von einer flüssigen Phase umgeben sind. Mineralische Partikel werden durch Transport aus der Troposphäre in die Stratosphäre eingebracht. Die Menge an mineralischem Aerosol ist im Allgemeinen sowohl durch den Transport als auch durch die Sedimentation dieser ungleich größeren und dichteren und daher auch schwereren Partikel begrenzt. Durch vulkanische Eruptionen, die Schwefel und feine Asche direkt in die Stratosphäre emittieren, wird die Menge mineralischer Partikel mehr oder weniger häufig deutlich erhöht. Vulkanische Eruptionen führen ebenfalls zu einer Zunahme des Sulfataerosols in der Stratosphäre. Zur Ausbildung von Sulfataerosol muss das SO<sub>2</sub> zunächst in der Stratosphäre chemisch zu H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> oxidiert werden. Das gebildete H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> kondensiert vornehmlich auf bereits existierende Aerosolpartikel, zum Teil werden jedoch auch durch Nukleation neue Sulfatpartikel gebildet. Nukleation findet hauptsächlich bei geringer Temperatur, hoher Feuchte sowie hohen Konzentrationen von H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> statt. Entsprechend findet Nukleation in der Stratosphäre überwiegend in der Nähe der Tropopause statt, im Bereich hochreichender troposphärischer Konvektion über den Tropen, sowie als Folge von vulkanischen Eruptionen. Die trockenen und relativ warmen Bedingungen in der Stratosphäre wirken der Nukleation dermaßen entgegen, dass das Sulfataerosol oberhalb von 3 hPa verdunstet.

Das stratosphärische Aerosol ist im Allgemeinen bimodal größenverteilt (e.g., Thomason and Peter, 2006). Der kleinere Modus (etwa 100 nm) entspricht im Wesentlichen dem ausschließlich flüssigen Sulfataerosol, welches genetisch von der Nukleation abhängt. Der größere Modus

(etwa 500-1000 nm) besteht aus mineralischen Partikeln. Die Flüssigphase der stratosphärischen Aerosolpartikel kann durch deren Transport in die Troposphäre, welche ungleich mehr  $\text{H}_2\text{SO}_4$  enthält, und anschließendes Wiedereinbringen in die Stratosphäre erhöht werden. Diesen Vorgang bezeichnet man als das sogenannte Recycling des stratosphärischen Aerosols. Er betrifft sowohl Partikel des kleineren Modus, welche durch diesen Umstand in den größeren hineinwachsen, als auch Partikel des größeren Modus. Die Partikelanzahldichte liegt im Allgemeinen für den kleineren Modus bei etwa  $10 \text{ cm}^{-3}$ , für den größeren bei etwa  $1 \text{ cm}^{-3}$ . Im Rahmen von rezenten Vulkaneruptionen nimmt die Anzahldichte der mineralischen Partikel auf ebenfalls etwa  $10 \text{ cm}^{-3}$  zu, während die Flüssigpartikel nur geringfügig zunehmen. Dies ist mehreren Prozessen geschuldet. Zum einen ist die Partikelneubildung durch den Umstand begrenzt, dass ein Großteil des  $\text{H}_2\text{SO}_4$  auf bereits bestehende Partikel kondensiert. Zum anderen wird die Anzahl neuer Partikel durch die Koagulation, dem Verschmelzen von zwei Partikeln nach deren Kollision, reduziert. Die Koagulation findet sowohl zwischen neugebildeten Partikeln als auch zwischen mineralischen Partikeln und Flüssigpartikeln statt. Durch die erhöhte Anzahl mineralischer Partikel im Zusammenhang mit vulkanischen Eruptionen ist die Effektivität der Koagulation erhöht und die Anzahl der Flüssigpartikel kann entsprechend nur marginal ansteigen.

#### 4.2.2 Stratosphärisches Aerosol und Ozonchemie im Rahmen des Geoengineering

Das Aerosol kann auf die Ozonchemie erheblichen Einfluss ausüben:

(1) Aerosol absorbiert sowohl kurzwellige als auch langwellige Strahlung. Dies kann zu einem relevanten lokalen Aufwärmeeffekt führen, welcher sowohl lokal die chemischen Reaktionsraten beeinflusst, als auch global die Zirkulation der Stratosphäre. Chemische Reaktionsraten nehmen mit Ausnahme der sogenannten Dreikörperreaktionen mit der Temperatur zu. So nimmt der  $\text{NO}_x$ - und der  $\text{ClO}_x$ - Abbauzyklus mit der Temperatur zu. Die heterogenen Reaktionsraten sind ebenfalls erhöht. Der Chapman-Zyklus hingegen verlangsamt sich mit der Temperatur, führt zu einer höheren Lebenszeit des Ozons und somit zu einem veränderten Höhenprofil (siehe oben). Der für die polaren Gebiete charakteristische  $\text{Cl}_2\text{O}_2$ -Zyklus und die Bildung der Reservoirspezies  $\text{ClONO}_2$  sind ebenfalls mit zunehmender Temperatur langsamer. Da der Ozongehalt der unteren Stratosphäre außerhalb der Tropen vor allem transportbedingt ist, kann eine veränderte stratosphärische Zirkulation zu verändertem Ozongehalt führen. Des Weiteren beeinflusst die Zirkulation wiederum die lokalen Temperaturbedingungen.

(2) Aerosol reflektiert die kurzwellige Strahlung und beeinflusst somit die photolytischen Reaktionsraten. Während es im oberen Bereich der Aerosolschicht zunächst zu einer Zunahme der photolytischen Reaktionsraten durch Rückstrahlung und Zunahme der Wegstrecke der Strahlung kommt, nehmen in darunter liegenden Höhenbereichen die photolytischen Reaktionen ab. In Konsequenz wird daher der Chapman-Zyklus im oberen Bereich beschleunigt und in den unteren Schichten verlangsamt. Der  $\text{ClO}_x$ -, der  $\text{HO}_x$ - und der  $\text{NO}_x$ -Zyklus werden im unteren Bereich durch die Unterdrückung der entsprechenden Nullzyklen im Zusammenhang mit der Photolyse von  $\text{NO}_2$  beschleunigt. Zusätzlich führt der durch das Aerosol bedingte Streueffekt zu einer erhöhten Absorption von UV-Licht durch das Ozon, welche den Aufwärmeeffekt des Aerosols indirekt verstärkt.

(3) Die heterogenen Reaktionsraten sind proportional zur Aerosolfläche. Der Einfluss auf die Ozonchemie ist wiederum gegensätzlich. Während vom  $\text{NO}_x$ -Zyklus dominierte Bereiche durch die vermehrte Aufnahme von  $\text{HNO}_3$  von einem verlangsamten Ozonabbau charakterisiert sind, kommt es in vom  $\text{ClO}_x$ -Zyklus bestimmten Bereichen, d.h. hauptsächlich in den Polargebieten, zu einem beschleunigten Ozonabbau durch die vermehrte Bereitstellung von Chlorradikalen aus der Reservoirspezies  $\text{ClONO}_2$ .

(4) Der Wassergehalt von Flüssigaerosol könnte die relative Feuchte der Stratosphäre erhöhen und somit den  $\text{HO}_x$ -Zyklus sehr signifikant antreiben. Dieser Effekt wurde in Verbindung mit der Einbringung großer Mengen Wasserdampf durch tiefe troposphärische Konvektion in den mittleren Breiten beobachtet.

(5) Die Aufnahmefähigkeit des Aerosols gegenüber  $\text{HNO}_3$  nimmt mit der Aerosolflüssigmasse zu. Durch diesen Vorgang wird der  $\text{NO}_x$ -Zyklus mit zunehmender Aerosolmasse tendenziell ausgebremst.

(6) Das Aerosol besitzt Einfluss auf die mikrophysikalischen Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken, welche wiederum den Abbau des polaren Ozons während der Ausbildung des Ozonlochs maßgeblich bestimmen. Diese Zusammenhänge werden im folgenden Abschnitt ausführlicher dargestellt.

Die genannten Einflussmechanismen des Aerosols üben, einzeln gesehen, teilweise gegensätzliche Einflüsse auf die Ozonchemie aus. Dies entspricht der bekannten Eigenschaft der relativen Stabilität der Ozonschicht durch sich ausgleichenden Effekte. Zum anderen können sich die genannten Prozesse jedoch auch effektiv addieren. Für den Fall des starken Ozonabbaus in gemäßigten Breiten im Zusammenhang mit hochreichender Konvektion (e.g., Anderson et al., 2012) wird die Verbindung der Aufheizung der Stratosphäre durch die veränderten Strahlungseigenschaften des Aerosols mit der Beschleunigung des  $\text{HO}_x$ -Zyklus verantwortlich gemacht. Diese Nichtlinearität der Ozonchemie in Verbindung mit den komplexen Aerosoleigenschaften gilt es, im Kontext des Geoengineering zu beachten. Sämtliche Einflüsse des Aerosols sind abhängig sowohl von dessen Gesamtmasse, pro Volumeneinheit und im Sinne dessen globaler Verteilung, als auch von der Partikelanzahldichte. Um diese Faktoren bestimmen zu können, müssen sämtliche mikrophysikalischen Prozesse explizit abgebildet werden. Stratosphärisches Geoengineering wird die mikrophysikalischen Eigenschaften signifikant beeinflussen, basiert es doch auf der Nachahmung der in Verbindung mit Vulkanausbrüchen festgestellten erhöhten Sulfatkonzentration in der Stratosphäre.

Mikrophysikalisch ist die Durchführbarkeit des stratosphärischen Geoengineering mit erheblichen Einschränkungen behaftet. Zum einen dürfen die künstlichen Aerosolpartikel nicht zu groß sein, weil ansonsten ihre Verweilzeit in der Stratosphäre aufgrund der Gravitation zu gering wäre (Benduhn und Lawrence, 2013), um den gewünschten Effekt zu erreichen. Zu große Partikel (ab etwa 1-2  $\mu\text{m}$  Durchmesser) würden ebenfalls die langwellige Strahlung stark absorbieren (Lacis et al., 1992), und damit einen Aufwärmeeffekt der Stratosphäre auslösen. Sie würden die allgemeine Effektivität des Geoengineering begrenzen, da diese durch die Gesamtoberfläche der Partikel bestimmt wird, welche grundsätzlich mit zunehmendem Radius bei gleicher Gesamtmasse abnimmt. Zum anderen nimmt die Reflektivität der Partikel mit abnehmendem Radius ab. Unterhalb eines Radius von etwa 100 nm ist die Reflektivität der

Partikel gering, oberhalb von etwa 500 nm ist die Verweilzeit durch die Sedimentation eingeschränkt. Zusätzlich werden kleinere Partikel bevorzugt in die obere Stratosphäre transportiert, wo sie verdunsten (Benduhn und Lawrence, in Vorbereitung). Schlussendlich muss sichergestellt werden, dass eine ausreichende Zahl an neuen Partikeln gebildet wird, da ansonsten das freigesetzte  $\text{H}_2\text{SO}_4$  auf schon bestehende Partikel kondensiert, wodurch die Partikel zu groß würden. Die dauerhafte Bildung neuer Partikel ist zusätzlich durch die Koagulation erheblich eingeschränkt (Benduhn und Lawrence, 2013). Soll die Effektivität des Geoengineerings evaluiert werden, müssen diese Prozesse daher detailliert dargestellt werden.

Eine weitere Unbekannte bezüglich des Geoengineerings besteht bezüglich der gewählten chemischen Spezies, die in der Stratosphäre freigesetzt werden soll. Flüssige Sulfatpartikel könnten direkt mittels freigesetzter Schwefelsäure, oder indirekt mittels einer sogenannten Vorläuferspezies gebildet werden. Vorläuferspezies müssen zunächst chemisch in der Stratosphäre in  $\text{H}_2\text{SO}_4$  konvertiert werden. Im Gespräch ist momentan hauptsächlich  $\text{SO}_2$ , aber auch  $\text{H}_2\text{S}$ . Der Gebrauch von Vorläuferspezies würde sich auf die mikrophysikalischen Eigenschaften des künstlichen Aerosols auswirken (e.g., Heckendorn et al., 2009; Pierce et al., 2010; Niemeier et al., 2011; English et al., 2012). Des Weiteren wird die Anwendung von Festpartikeln in Betracht gezogen. Die chemische Zusammensetzung dieser Partikel soll so gewählt werden, dass sie eine möglichst hohe Reflektivität aufweisen. Festpartikel könnten aufgrund ihrer chemisch spezifischen Reflektivität kleiner als Flüssigpartikel gewählt werden. Durch diese Eigenschaft würden sie weniger dazu tendieren zu sedimentieren, während auch keine Verluste durch Verdunstung bestünden. Ob die Effektivität der Festpartikel nicht durch die Koagulation eingeschränkt wäre, kann zum jetzigen Zeitpunkt nicht gesagt werden. Prinzipiell würden die künstlichen Festpartikel ebenso wie mineralische Partikel dazu tendieren, einen flüssigen Mantel auszubilden. Es könnten jedoch technische Verfahren entwickelt werden, die gleich einer Impermeabilisierung die Ausbildung einer flüssigen Schicht hemmen würden. Sollten Festpartikel im Laufe ihrer Verweilzeit eine wässrige  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Lösung um sich herum ausbilden, so würden sie auf gleiche Weise auf die Ozonchemie wirken wie die flüssigen Partikel.

Obwohl die mikrophysikalischen Einschränkungen der Effektivität des Geoengineerings, und somit auch die voraussichtliche Wirkung des künstlichen Aerosols auf die Ozonchemie der Stratosphäre, von großer Bedeutung sind, ist es im Rahmen dieser Studie wenig sinnvoll, diese technischen Einschränkungen nach derzeitigem Erkenntnisstand möglichst realistisch zu berücksichtigen, sofern diese zu einer Reduktion der Effektivität des Geoengineering führen würden. Ziel dieser Studie ist es, den Einfluss von effektivem Geoengineering auf das stratosphärische Ozon abzuschätzen, und nicht den Einfluss dessen abzuschätzen was derzeit technisch machbar erscheint. Gleichwohl ist es notwendig, die mikrophysikalischen Eigenschaften des Aerosols im Rahmen eines effektiven Geoengineeringszenarios möglichst detailliert darzustellen, in Hinsicht auf eine möglichst realistische Darstellung von dessen Einfluss auf die Ozonchemie. In diesem Sinne wird in dieser Studie ein Geoengineeringschema zur Anwendung kommen, welches auf Modellebene eine effektive künstliche Aerosolschicht ausbildet. Auf diese Weise kann der mögliche Einfluss des Geoengineering auf die Ozonschicht unter der Annahme, dass Geoengineering technisch realisierbar ist, möglichst realistisch abgeschätzt werden.

### 4.2.3 Polare stratosphärische Wolken

Die polaren stratosphärischen Wolken bilden eine Besonderheit in der Stratosphäre. Unter typischen Bedingungen der Stratosphäre wird die Bildung von Wolken durch mehrere Faktoren behindert. Durch das Zusammenwirken des geringen relativen Feuchtegehalts und der durch den positiven Temperaturgradienten verhinderten Konvektion können sich keine Wolken durch Überschreiten des Sättigungsdampfdrucks bilden. Lediglich bei den für die Polargebiete zur Winterzeit typischerweise sehr niedrigen Temperaturen von ca. 200 K und weniger kommt es zur Bildung von größeren Partikeln, die aufgrund der Auffälligkeit ihrer optischen Eigenschaften als Wolken klassifiziert werden. Die Bildung der polaren Wolken ist strikt mit dem Vorhandensein des Polarwirbels korreliert, denn nur aufgrund der Isolation der polaren Luftmassen in diesem Zusammenhang kann die Temperatur tief genug sinken. Da der Polarwirbel über der Antarktis weitaus stabiler ist als über der Arktis, sind die südhemisphärischen stratosphärischen Wolken stabiler. Sie besitzen daher einen längeren Lebenszyklus und eine größere Ausdehnung. Die Entstehung des Ozonlochs über der Südhemisphäre ist gleichfalls an dieses Phänomen gekoppelt.

Die Partikel der stratosphärischen Wolken bilden sich durch die sogenannte in-situ Nukleation, d.h. durch Übersättigung infolge lokalen Absinkens der Temperatur unterhalb eines bestimmten Schwellenwerts. Die Partikel besitzen mehrere typische Zusammensetzungen aufgrund welcher sie in mehrere Typen eingeteilt werden:

- (1) Typ Ia: Die Partikel befinden sich in der kristallinen Festphase, besitzen typischerweise einen Radius von etwa 1-5  $\mu\text{m}$ , und bestehen aus  $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  mit einer Beimengung von  $\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  oder lediglich aus Letzterer.
- (2) Typ Ib: Die Partikel befinden sich in der Flüssigphase, besitzen typischerweise einen Radius von etwa 0.5  $\mu\text{m}$ , und bestehen aus einer ternären Lösung aus  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{O}$ .
- (3) Typ II: Die Partikel befinden sich in der kristallinen Festphase, besitzen einen Radius von typischerweise 2-10  $\mu\text{m}$  und bestehen hauptsächlich aus gefrorenem Wasser.

Neben den drei Haupttypen gibt es noch diverse Mischtypen, insbesondere Partikel, die aus einer Flüssigphase und aus einer Festphase zusammengesetzt sind. Das Verständnis der Genetik der polaren stratosphärischen Wolken hat sich in den letzten Jahrzehnten grundlegend verändert. Während Peter (1997) noch von einer linearen Evolution von Partikeln vom Typ Ib zu Partikeln zum Typ II über den Typ Ia ausging zeichnet sich heute ein ungleich komplexeres Bild (Lowe and MacKenzie, 2008). Partikel vom Typ Ib beginnen sich unterhalb einer Temperatur von etwa 200-210 K durch den drastischen Anstieg der Löslichkeit von  $\text{HNO}_3$  auszubilden. Obwohl Partikel vom Typ Ia in der Stratosphäre typischerweise bis zu einer Temperatur von etwa 190-200 K stabil sind, und der Typ II lediglich unterhalb von etwa 185-195 K stabil ist, bilden sich oft zunächst Partikel vom Typ II aufgrund des Typs Ib. Partikel vom Typ Ia bilden sich oft nur residual auf Basis des Typs II durch die Verdunstung des Wassers bei Temperaturen von über 188 K, können sich jedoch auch direkt durch Nukleation auf Basis des Typs Ib bilden (Ward et al., 2014).

Über die Mikrophysik der polaren stratosphärischen Wolken ist mit Ausnahme der typischen Größe und Partikelanzahldichte wenig bekannt. Die Anzahldichte der Partikel vom Typ Ib liegt typischerweise im Bereich derer der Aerosolpartikel, eine Eigenschaft, die sich aus dem

Umstand der Entwicklung ersterer aus letzteren erklären lässt. Die Anzahldichte der Partikel vom Typ II und Ia ist, soweit bekannt, ähnlich und liegt typischerweise bei etwa  $0.03 \text{ cm}^{-3}$ . Des Weiteren wird angenommen, dass Partikel dieser Typen sich aus Partikeln des Typs Ib bilden, was auf eine gewisse mikrophysikalische Entwicklung der Partikel vom Typ Ib schließen lässt. Partikel vom Typ II und vom Typ Ia koagulieren dagegen nicht mehr, während ein direkter genetischer Zusammenhang zwischen diesen Partikeln vermutet wird. Sie weisen daher unabhängig ihres genauen genetischen Zusammenhangs eine ähnliche Anzahldichte auf.

#### **4.2.4 Polare stratosphärische Wolken und Ozonchemie im Rahmen des Geoengineerings**

Wie weiter oben beschrieben, besitzen polare stratosphärische Wolken entscheidenden Einfluss auf die Ausbildung des Ozonlochs über die Bereitstellung von Chlorradikalen aus der Reservoirspezies  $\text{ClONO}_2$  und aus dem in den polaren stratosphärischen Wolken gelösten  $\text{HCl}$  sowie über die im Zusammenhang mit der Denitrifikation unterdrückte Neubildung der Reservoirspezies. Die Frage, inwiefern sich die Eigenschaften der stratosphärischen Wolken im Zusammenhang mit dem Geoengineering verändern könnten, ist insofern von Bedeutung, als die heterogenen Reaktionsraten von den mikrophysikalischen Eigenschaften der Wolkenartikel bestimmt sind.

Das Geoengineering sollte zunächst zu einer Erwärmung führen, sodass die Ausbildung des Polarwirbels beeinträchtigt sein könnte, und demnach die Tendenz einer mehr oder weniger ausgeprägten Reduktion des Ozonlochs bestünde. Des Weiteren könnte die typische Anzahldichte und somit der typische Radius der Partikel der stratosphärischen Wolken in Funktion deren Typs durch das Geoengineering beeinträchtigt sein. Aus Beobachtungen zu den Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken wissen wir, dass einerseits eine Tendenz zu verminderter Häufigkeit ihres Auftretens anlässlich der Eruptionen von El Chichon (1983), Nevado del Ruiz (1987) und Pinatubo (1992) zu bestehen scheint (Fromm et al., 2003). Während sich diese Beobachtung lediglich auf die Häufigkeit bezieht, bringen Wang et al. (1995) die Häufigkeit der antarktischen stratosphärischen Wolken in der Periode 1985-1990 anlässlich der El Chichon Eruption mit Anomalien der optischen Eigenschaften dieser Wolken in Zusammenhang. Die Autoren versuchen diese Anomalien konsistent mit der Variation des effektiven Radius der Partikel zu erklären. Hofmann und Oltmans (1994) führen den erhöhten Ozonabbau im Jahre 1993 in Zusammenhang mit der Eruption des Pinatubo direkt auf das Sulfataerosol zurück, da der Abbau bereits vor dem Auftreten der polaren stratosphärischen Wolken stattfindet. Andererseits beobachteten Deshler et al. (1994) im gleichen Zusammenhang ausgeprägte Veränderungen der mikrophysikalischen Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken. Die typische Größe der Partikel vom Typ Ia ist deutlich verringert auf typischerweise unter  $1 \text{ }\mu\text{m}$ , die Gesamtoberfläche der Partikel ist entsprechend vergrößert. Dieser Vorgang scheint deutlich mit dem vulkanischen Aerosol korreliert zu sein. Die höhere Partikelanzahldichte scheint zu einer höheren Anzahl aktivierter Partikel zu führen. Das vorhandene  $\text{HNO}_3$  muss sich daher auf mehr Partikel verteilen, so dass die Partikel entsprechend kleiner sind. Deshler et al. beobachten einen Anstieg der Partikelanzahldichte auf bis zu  $10 \text{ cm}^{-3}$  bei Wolken vom Typ Ia, sowie eine Wolke vom Typ II mit einer Anzahldichte von etwa  $1 \text{ cm}^{-3}$ . Die Gesamtoberfläche ist im Vergleich zu den vorherigen Jahren etwa vervierfacht. Im Jahr 1993 wurde ein außergewöhnlich ausgeprägtes Ozonloch beobachtet in dem kein stratosphärisches Ozon mehr vorhanden war.

## 5 Dynamik der ungestörten Stratosphäre

Anders als in der Troposphäre, wo der stärkste Temperaturgradient zwischen dem Äquator und den Polen auftritt, erstreckt sich in der Stratosphäre ein kontinuierlicher Temperaturgradient zwischen dem Sommer- und dem Winterpol. Der Sommerpol wird 24 Stunden am Tag durch solare Einstrahlung erwärmt und hat damit die höchste Erwärmungsrate in der Atmosphäre. Am Winterpol fehlt die solare Einstrahlung, eine geringe Erwärmung erfolgt aber durch Absorption langwelliger Strahlung durch Ozon. Dadurch ergibt sich ein recht gleichmäßiger Temperaturgradient vom Sommer- zum Winterpol.

Eine weitere Besonderheit der Stratosphäre gegenüber der Troposphäre ist der Antrieb der Zirkulation. Dieser erfolgt nur zum Teil durch Druckunterschieden infolge von Temperaturgradienten, die wesentliche Ursache dynamischer Vorgänge in der Troposphäre, sondern insbesondere durch die Dissipation von Rossby- und Schwerewellen. Dissipierende Wellen geben ihre Energie an die Umgebung ab. Vorstellen kann man sich diesen Prozess, wenn man brechende Wellen am Strand beobachtet. Ein Teil der Energie geht in die Bewegung von Sand und Steinen, ein Teil wird reflektiert und als Rückströmung wieder an das Meer gegeben.

Im Folgenden werden die für diesen Bericht wesentlichen dynamischen Phänomene der Stratosphäre kurz erläutert. Die Phänomene werden anschaulich beschrieben, da eine genauere Betrachtung weit über die hier notwendigen Informationen hinausgehen würde. Die Informationen folgen im Wesentlichen einem E-Textbuch des NASA Goddard Institutes for Space Studies (NASA, 2000)

### 5.1 Regionen der Stratosphäre

Die Stratosphäre lässt sich in vier Regionen aufteilen: Tropen, mittlere Breiten (Brandungszone), Polarwirbel und untere Stratosphäre, welche die Übergangsregion zur Troposphäre bildet.

#### 5.1.1 Tropen

Die stratosphärischen Tropen erstrecken sich von 20° N bis 20° S. In den Tropen ist die solare Einstrahlung ausreichend energiereich, um photolytisch Ozon zu bilden (siehe Kap. 4). Diese Region ist somit die Quellregion für Ozon und wird von dort via Brewer Dobson Zirkulation (siehe Abschnitt 5.2) global verteilt. Dynamisch dominiert die quasi biennale Oszillation (QBO), mit in einer mittleren Oszillation von 29 Monaten wechselnden Ost- und Westwinden (siehe Abschnitt 5.3).

#### 5.1.2 Mittlere Breiten

Die mittleren Breiten der Stratosphäre werden auch als Brandungszone bezeichnet. Hier dissipieren die planetaren Wellen (Rossbywellen) und geben ihre Energie ab, welche die Brewer Dobson Zirkulation (Abschnitt 5.3) antreibt. Zudem treffen hier ozonreiche Luftmassen vom Äquator auf ozonärmere Luftmassen der Polarregionen und werden durch turbulente Vorgänge durchmischt. Abbildung 5.1 zeigt beispielhaft die mit ECHAM5-HAM berechnete Verteilung des Schwefels und der Asche nach einer großen Vulkaneruption in den mittleren

Breiten im Verlauf von 7 Tagen (links) und 15 Tagen (rechts). Da die Eruption auf etwa 40° N erfolgte, wurde der Schwefel zunächst in der Nordhemisphäre verteilt. Nach ca. einem Monat war die Schwefelwolke

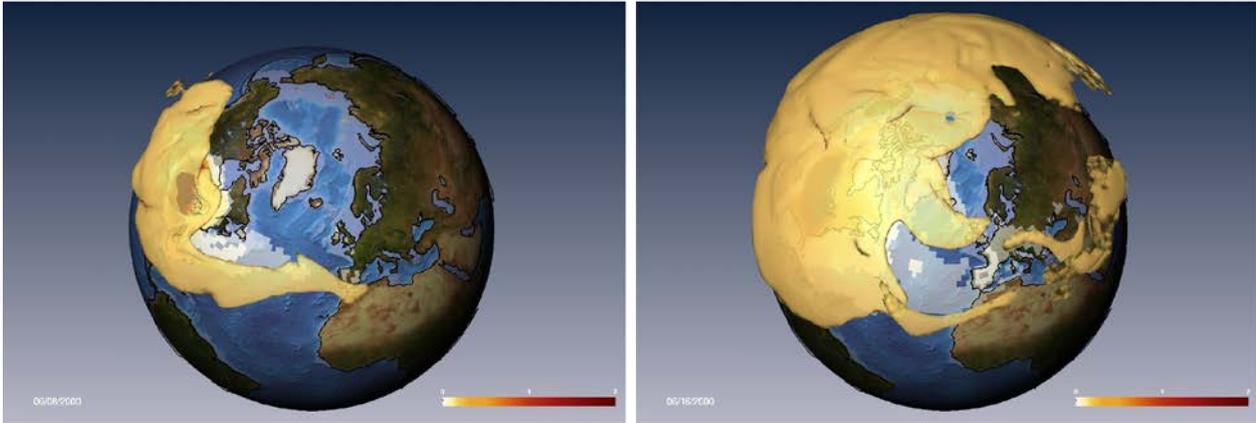


Abb. 5.1: Modellsimulation der Verteilung von Schwefel (gelb) und Asche (grau) 7 Tage (links) und 15 Tage (rechts) nach einer Vulkaneruption in den mittleren Breiten. Bei einer Emission auf 40° N wird der Schwefel zunächst in der nördlichen Hemisphäre verteilt, anschließend auch auf der südlichen Hemisphäre. Emissionen in den Tropen verteilen sich gleichmäßiger auf beiden Hemisphären, wie Satellitenaufnahmen nach der Eruption des Pinatubos zeigen.

dort weitgehend gleichmäßig durchmischt. Emissionen in Äquatornähe, wie z.B. bei der Eruption des Pinatubos auf der philippinischen Insel Luzon, werden schneller und gleichmäßiger in beide Hemisphären transportiert da die Sulfatwolke bereits im Bereich des südlichen und nördlichen Zweiges der Brewer Dobson Zirkulation ist.

### 5.1.3 Polarwirbel

In den hohen Breiten bildet sich in der jeweiligen stratosphärischen Winterhemisphäre ein Band mit hohen zonalen Windgeschwindigkeiten, der Polarnacht-Strahlstrom. Dies Band entsteht im Bereich der größten Temperaturgradienten am Übergang zwischen Polarnacht und Regionen mit Sonneneinstrahlung. Als Polarwirbel wird die vom Strahlstrom eingeschlossene Region bezeichnet. Polarwirbel sind großräumige Höhentiefs und eine Folge der fehlenden solaren Einstrahlung in den Wintermonaten und der damit verbundenen niedrigen Temperaturen. Sie bilden sich im Herbst wenn das Sonnenlicht an den Polen abnimmt und haben ihr Maximum im Winter. Mit zunehmendem Sonnenlicht im Frühjahr nimmt die Stärke ab und der Polarwirbel verschwindet völlig im Sommer.

Der Polarwirbel ist auf der Südhalbkugel wesentlich stabiler als auf der Nordhalbkugel, wo die Landmassen Störungen in der zonalen Strömung hervorrufen. Der antarktische Polarwirbel verhindert im dortigen Winter einen Austausch der Luftmassen in der Polregion und blockiert den Transport von Spurenstoffen zum Pol. Beides ist, neben den extrem niedrigen Temperaturen im winterlichen antarktischen Polarwirbel ein wesentlicher Grund für die Entstehung des antarktischen Ozonlochs.

Auf der Nordhalbkugel ist der Polarwirbel schwächer und instabiler. Die Verteilung der Landmassen stört die Symmetrie, welcher der antarktische Wirbel hat. Größere Aktivität der planetaren Wellen beeinflusst den Polarwirbel durch Dissipation östlicher Bewegungsenergie (Waught und Polvani, 2010). Die Dissipation der Wellen stärkt die meridionale Windkomponente und schwächt dadurch die zonale Windgeschwindigkeit ab. Zudem wird die arktische Stratosphäre wärmer und die Windgeschwindigkeit im Strahlstrom damit geringer. Diese Wellenaktivität in der Nordhemisphäre führt zu einer hohen interannuellen Variabilität des Polarwirbels. Signifikante Aussagen zu Änderungen in der Stärke des Polarwirbels, z.B. durch Vulkaneruptionen oder stratosphärische Schwefelinjektionen lassen sich daher i.a. nur in langen Zeitreihen finden.

## 5.2 Brewer Dobson Zirkulation

Die großskalige Dynamik der Stratosphäre wird durch die sogenannte Brewer Dobson Zirkulation dominiert: Aufsteigende Luftmassen in Äquatornähe, Transport polwärts und absteigende Bewegung in den polaren Breiten. Diese großskalige Zirkulation verteilt Luftmassen und Spurenstoffe global in der Stratosphäre. Zum Beispiel Ozon, welches nur in den Tropen gebildet wird, wird über die Brewer Dobson Zirkulation zu den Polen transportiert. Die Stromfunktion in Abbildung 5.2c zeigt ein jährliches Mittel der Brewer Dobson Zirkulation. Die Strömung folgt den abgebildeten Isolinien: positive Isolinien stehen für Bewegung im Uhrzeigersinn, negative für Bewegung entgegen dem Uhrzeigersinn.

Die Brewer Dobson Zirkulation manifestiert sich in kalten absteigenden Luftmassen am Winterpol und als Ausgleich entstehenden Aufwärtsbewegungen in den Tropen. Angetrieben wird die Brewer Dobson Zirkulation jedoch durch brechende Rossbywellen in der polaren Winterhemisphäre. Die Gebirgszüge der Rocky Mountains und des Himalayas lassen planetare Wellen entstehen, welche vertikal in die Stratosphäre propagieren und dort in den winterlichen Westwindregionen dissipieren. Das Brechen dieser Wellen erzeugt die plötzliche Stratosphärenenerwärmung, Einströmen warmer Luft in den Polarwirbel, welches letztlich die Brewer Dobson Zirkulation antreibt. Entsprechend den Jahreszeiten und größeren horizontalen Temperaturgradienten in der Winterhemisphäre verstärkt sich dort die Wellenaktivität und als Folge der meridionale Transport. Damit ist die Brewer Dobson Zirkulation im Wesentlichen ein Winterphänomen. Die daraus resultierenden jahreszeitenabhängigen Strömungsmuster zeigen Abbildung 5.2a und 5.2b im Januar (links) und Juli (rechts) und Abbildung 5.2c zeigt die Strömungsverhältnisse der Brewer Dobson Zirkulation im Jahresmittel. Verstärkt wird die Brewer Dobson Zirkulation auch durch niedrige Temperaturen im winterlichen Polarwirbel (Gerber, 2012), da Rossbywellen in größerer Höhe dissipieren. Die Erwärmung der Stratosphäre durch Sulfataerosole verstärkt den tropischen Antrieb als Folge der Erhaltung des thermischen Gleichgewichts (Garfinkel et al, 2012) und verstärkt so ebenfalls die Brewer Dobson Zirkulation.

## 5.3 Quasi biennale Oszillation (QBO)

Der dominierende regionale dynamische Prozess in den Tropen ist die QBO. In einer Höhe von etwa 15 km bis 30 km, der unteren Stratosphäre, wechselt die zonale Windrichtung mit einer Periode von 22 bis 34 Monaten zwischen Ost- und Westwind. Die horizontale Erstreckung der QBO beschränkt sich auf einen Bereich in den inneren Tropen etwa zwischen 15° N und 15° S. Die QBO wird durch vertikal und horizontal propagierende Wellen angetrieben. Diese Wellen

geben ihren östlichen und westlichen Impuls aufgrund strahlungsbedingter Abschwächung und Wellenbrechen an den Grundstrom ab. Zur Simulation dieser Wellen und damit der QBO müssen konvektive Prozesse welche die Wellen auslösen, die Wellenpropagation und die Dissipation, realistisch

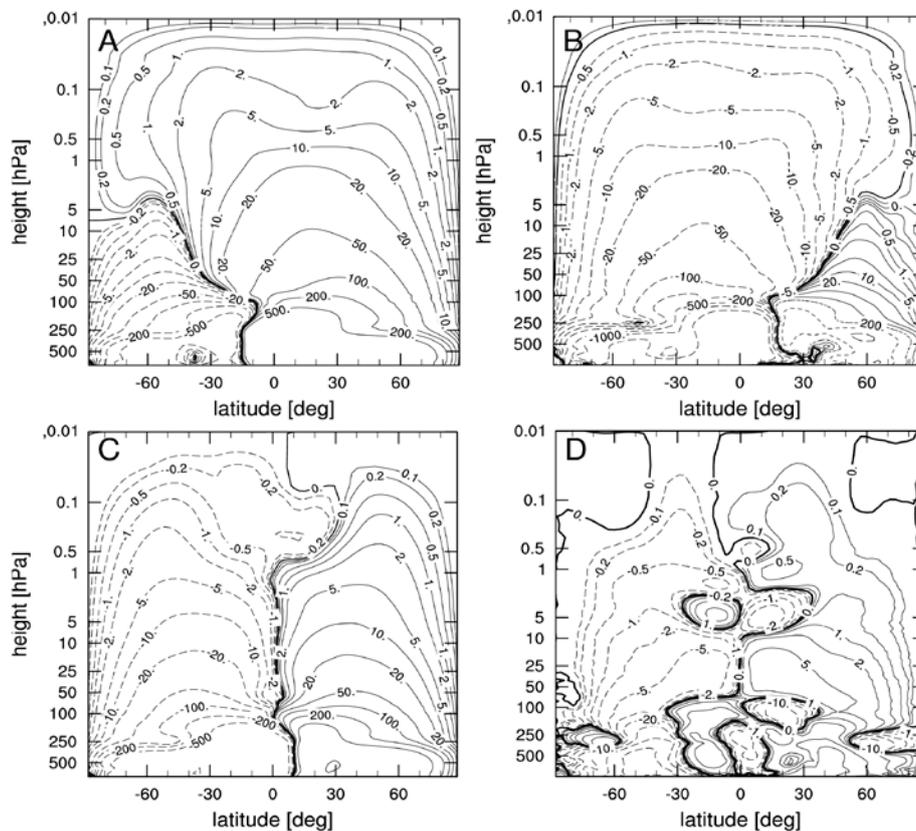


Abb. 5.2: Brewer Dobson Zirkulation in der Stratosphäre, dargestellt anhand der Stromfunktion. Die Strömung folgt den Isolinien im Uhrzeigersinn (durchgezogene Linien) bzw. entgegen dem Uhrzeigersinn (gestrichelte Linien). A: Stromlinien des Kontrolllaufs gemittelt über die Monate Dezember, Januar und Februar (DJF), B: Mittel über die Monate Juni, Juli, August (JJA), C: jährliches Mittel, D: Differenz der Stromfunktion einer Simulation mit Schwefelemissionen von 8 Mt S/Jahr zum Kontrolllauf.

simuliert werden (Holton und Lindzen, 1972). Die Interaktion zwischen Wellen und zonaler Strömung beinhaltet die vertikale Ausbreitung eines äquatorialen Wellenspektrums mit Ausgangspunkt in der Troposphäre und deren Dissipation durch dynamische und physikalische Vorgänge (Giorgetta et al., 2006). Möglich ist die Simulation dieser Prozesse nur in einem vertikal hoch aufgelösten Modell.

Abbildung 8.1a zeigt oben die von ECHAM5-HAM berechnete QBO der ungestörten Stratosphäre am Äquator. Blau abgebildet ist das zonale Mittel des östlichen Zonalwindes und rot das des westlichen Zonalwindes. Die QBO erstreckt sich von 5 hPa bis hinunter auf etwa 60 hPa und reicht damit nicht ganz bis an die in der Natur beobachteten 100 hPa heran. Zwischen 1 und 5 hPa wechseln sich Ost- und Westwinde im halbjährlichen Rhythmus ab.

In den vergangenen Jahrzehnten wurde in vielen Studien versucht, die Auswirkungen der QBO auf die Dynamik der tropischen und extratropischen Stratosphäre herauszufinden (siehe z.B.

Baldwin et al (2001)). Ein deutliches Signal fanden Holton und Tan (1980, 1982) in der extratropischen Stratosphäre der nördlichen Hemisphäre. Holton und Tan zeigten durch die Auswertung von langjährigen Messreihen, dass die QBO die Region dissipierender Rossbywellen meridional verschiebt: polwärts in einer QBO Ostphase und in Richtung Äquator in einer QBO Westphase. Dadurch wird der stratosphärische Polarwirbel in einer Westphase der QBO in den Wintermonaten stärker und stabiler als in einer Ostphase. Diese großskalige Interaktion zwischen QBO und Polarwirbel wird als Holton-Tan Effekt bezeichnet. Durch die hohe interannuelle Variabilität des Polarwirbels ist der Holton-Tan Effekt nur in langen Zeitreihen signifikant zu erkennen.

## 6 Modellbeschreibung und durchgeführte Simulationen

Die Injektion von SO<sub>2</sub> und die dadurch entstehende stratosphärische Sulfataerosolschicht soll die solare Einstrahlung am Boden verringern und so der Erwärmung durch Treibhausgase entgegen wirken. Experimente in der Natur mit einer künstlichen Sulfatschicht sind ausgeschlossen und es stehen nur wenige Messungen mit ähnlichen Effekten nach Vulkanausbrüchen zur Verfügung. Die chemischen und mikrophysikalischen Vorgänge in einer Vulkanwolke entsprechen zum Großteil denen bei künstlicher Ausbringung von SO<sub>2</sub> in die Stratosphäre. Ein großer Unterschied sind aber die höheren Schwefelkonzentrationen in der Vulkanwolke. Modelle sind daher ein bevorzugtes Werkzeug, um die Entwicklung des Sulfates zu berechnen.

Alle Resultate dieser Studie wurden mit einem globalen atmosphärischen Zirkulationsmodell (ECHAM5) erstellt, welches in zwei Varianten verwendet wurde:

- 1) gekoppelt mit dem aerosolmikrophysikalischen Modul HAM (ECHAM5-HAM), sowie
- 2) zusätzlich zur Aerosolmikrophysik mit Modulen gekoppelt welche die Simulation der heterogenen Chemie und der Ozonchemie unter stratosphärischen Bedingungen erlauben und um ein Strahlungstransportmodell ergänzt sind (EMAC).

Die Kombination dieser Komponenten in einem numerischen Modell stellt die Koppelung der komplizierten Wechselwirkung der einzelnen Prozesse sicher.

Die für das Vorhaben notwendige Rechenzeit wurde vom Deutschen Klimarechenzentrum zur Verfügung gestellt.

### 6.1 Modellbeschreibung

Eine der Voraussetzungen des Vorhabens war die Anwendung von allgemeinen Zirkulationsmodellen (GCM) mit sehr komplexer Aerosolmikrophysik und der Berücksichtigung chemischer Reaktionssysteme. Das Zirkulationsmodell ECHAM5 (Roeckner, 2003) wurde in der Version für die mittlere Atmosphäre MAECHAM (Giorgetta et al., 2006) verwendet und deckt einen Höhenbereich bis 0.01 hPa (~80km) ab. Dies ist insofern wichtig, als dass eine akkurate Simulation der Stratosphäre nicht nur die Wechselwirkung mit der Troposphäre, sondern auch mit der Mesosphäre berücksichtigen muss. Zudem ermöglichte erst die hohe vertikale Auflösung mit 90 Schichten eine explizite Berechnung der QBO. In ECHAM werden prognostische Gleichungen für Vorticity, Divergenz, Bodendruck und Temperatur gelöst. Das Modell ist international anerkannt und wird in Verbindung mit Ozean- und Landmodellen sowie mit gekoppeltem Kohlenstoffkreislauf als Erdsystemmodell betrieben. Das Modell wurde für Simulationen zum Klimamodell-Vergleichsprojekt CMIP5 („Coupled Model Intercomparison Project Phase 5“) verwendet (Giorgetta et al., 2013).

#### 6.1.1 EMAC

Die Bedingungen zur Berechnung des Einflusses der künstlichen Aerosolschicht auf tropisches und polares Ozon erfüllt das globale Chemie-, Aerosol- und Zirkulationsmodell EMAC (Joeckel et al., 2006): Es basiert auf der Kombination des GCMs ECHAM5 mit einer Vielzahl von aerosol- und chemiespezifischen Submodellen. Von besonderer Bedeutung waren die Komponenten

zur Berücksichtigung atmosphärenchemischer Prozesse (MECCA; Sander et al., 2005), zur Aerosolmikrophysik und -chemie (GMXe, Pringle, 2011) und zu den polaren stratosphärischen Wolken (PSC, Buchholtz, 2005). MECCA enthält ein umfangreiches Reaktionssystem der atmosphärischen Chemie, gültig sowohl für die Troposphäre als auch für die Stratosphäre. Das Reaktionssystem umfasst:

- 1) Basischemie von O<sub>3</sub>, CH<sub>4</sub>, HO<sub>x</sub>, und NO<sub>x</sub>,
- 2) NMHC-Chemie (non-methane hydrocarbon),
- 3) Halogenchemie, und
- 4) Sulfatchemie.

Es werden nicht nur Reaktionen der Gasphasenchemie berücksichtigt, sondern auch die Flüssigphase und heterogene Chemie einbezogen. Das Aerosolmodul GMXe basiert wie HAM auf dem mikrophysikalischen Kern M7. GMXe ermöglicht die explizite Simulation der Aerosoldynamik hinsichtlich der Nukleation, Kondensation und Koagulation sowie der chemischen Zusammensetzung (Partitionierung von Ammoniak und Salpetersäure), des Wassergehalts und des Aggregatzustands des Aerosols. EMAC simuliert in der Kombination MECCA, GMXe und PSC die Prozesse, die zur Bildung der Ozonschicht notwendig sind und zeigt bei Vergleichen mit Messungen gute Ergebnisse (Jöckel et al., 2006).

### **6.1.2 ECHAM5-HAM**

In der Modellversion ECHAM5-HAM wird die Bildung und Entwicklung von Sulfataerosolen mit dem mikrophysikalischen Aerosolmodell HAM berechnet, welches interaktiv an ECHAM5 gekoppelt ist. ECHAM5 wurde in Kombination mit HAM (Stier et al., 2005) zur Simulation der Entwicklung einer vulkanischen Aerosolwolke nach Vulkanausbrüchen und im Rahmen der IMPLICC Studie (Niemeier et al., 2011, 2013) verwendet.

HAM basiert auf dem mikrophysikalischen Kern M7 (Vignati et al., 2007). Das Modell berechnet die Oxidation von SO<sub>2</sub> zu H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, sowie die weitere Evolution des entstandenen Aerosols durch Nukleation, Kondensation und Akkumulation. Die Berücksichtigung der Größenverteilung der Aerosole in HAM, ursprünglich für die Troposphäre entwickelt, wurde an die Bedingungen erhöhter SO<sub>2</sub> Konzentrationen in der Stratosphäre nach Vulkaneruptionen angepasst (Kokkola et al., 2009, Niemeier et al., 2009). Eine weitere Optimierung erfolgte für Bedingungen unter Geoengineering nach Heckendorn et al., 2009. Details zur Schwefelchemie und zu den vorgegebenen chemischen Konzentrationen sind in Niemeier et al. (2009) beschrieben. In den für dieses Vorhaben durchgeführten Simulationen werden nur Schwefel und Sulfat als Tracer verwendet. Die troposphärischen Tracer (z.B. Staub, Seesalz) wurden ausgeschaltet.

Vergleiche mit Messungen nach der Pinatuboeruption zeigen, dass die Aerosolwolke, deren Transport und globale Ausbreitung sowie die mikrophysikalische Entwicklung gut vom Modell simuliert werden (Niemeier et al., 2009; Toohey et al., 2011). Dieses Modell wurde für die Dynamikstudie zur QBO (Kapitel 8) verwendet.

## **6.2 Beschreibung der Simulationen**

Die aus Simulationen abgeschätzte Schwefelmenge, die benötigt würde, um die Wirkung der anthropogenen Treibhausgase in der Atmosphäre auszugleichen, divergiert zum Teil erheblich.

Dafür verantwortlich sind unterschiedliche Aerosolgrößenverteilungen, differentielle Annahmen und Resultate zur regionalen Verteilung der Aerosole zwischen Tropen und Polen, sowie der somit unterschiedliche Strahlungsantrieb der stratosphärischen Sulfatschicht. Gegenwärtige Schätzungen bewegen sich im Rahmen von 1-10 Mt S pro Jahr (Rasch et al., 2008; Niemeier et al., 2013). Die Schwefel- und Sulfatkonzentration wird generell in Schwefeläquivalenten (=S) angegeben. Dadurch wird die Vergleichbarkeit der eingebrachten Mengen sichergestellt, unabhängig davon, ob  $H_2SO_4$ ,  $H_2S$  und  $SO_2$  emittiert wird.

Die zu emittierende Schwefelmenge hängt nicht nur von der gewünschten Größenordnung der Klimabeeinflussung ab, z.B. gewünschte Temperaturabnahme, sondern auch von der auszugleichenden meteorologischen Größe. Möglich wären hier Temperatur, Niederschlag oder die Summe der lang- und kurzwelligen Einstrahlung. Da es zwischen diesen drei Parametern keinen einfachen Zusammenhang gibt, lassen sie sich in der Regel nicht gleichzeitig konstant halten (Schmidt et al, 2012) und benötigen zum versuchten Ausgleich unterschiedliche Schwefelmengen. Des Weiteren muss eine räumliche Wahl getroffen werden, d.h. wo sollen diese Variablen konstant gehalten werden, global oder regional selektiv? Ein möglicher Ansatz betrifft die global gemittelte lang- und kurzwellige Einstrahlung (Niemeier et al., 2013). Da der Strahlungsantrieb der anthropogenen Treibhausgase zunimmt, sind auch die benötigten Schwefelmengen zeitlich veränderlich. Weitere Faktoren, welche die benötigte Menge beeinflussen, sind Unsicherheiten bezüglich der mikrophysikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel, deren Ausbreitung in der Stratosphäre sowie deren Lebensdauer (Heckendorn et al., 2009; Pierce et al., 2010; Niemeier et al., 2011; English et al., 2012). Die zeitliche und räumliche Wahl der Eingabe des gewählten Materials spielt ebenso eine Rolle, ob kontinuierlich oder intermittierend, ob großräumig oder lokal, sowie die Höhe und der Breitengrad der Eingabe.

### 6.2.1 Auswirkung der Emissionsstrategie auf die Evolution der Sulfatschicht

Simulationen verschiedener Modelle zur Evolution der Sulfatwolke geben abweichende Resultate (Heckendorn et al, 2009; English et al, 2012; Niemeier et al, 2011). Die Ursachen liegen nicht nur in unterschiedlichen mikrophysikalischen Aerosolmodellen, sondern auch im unterschiedlichen Transport des Sulfates. Deutlich wird dieses an Vergleichen mit Messungen nach der Eruption des Pinatubos, wo sich der Transport zu den Polen, besonders zum Südpol, unterscheidet. Niemeier et al (2011) beschreibt den Einfluss der Emissionsstrategie auf Sulfatkonzentration, Teilchenradius und die solare Strahlungsänderung am Boden.

Abbildung 6.1 (links) zeigt die Abnahme der solaren Nettoeinstrahlung am Boden in Abhängigkeit von der Emissionsstärke sowie die Abhängigkeit vom Emissionsszenario bzw. der Modellkonfiguration. Es wurden Emissionsstärken zwischen 1 und 10 Mt S/Jahr angenommen. Beim Ausbruch des Pinatubos 1991 auf den Philippinen wurden im Vergleich etwa 8 Mt S in circa 3 Stunden in die Stratosphäre emittiert. Die orangene und rote Kurve zeigen die Reduktion der solaren Strahlung am Boden für verschiedene Emissionshöhen (orange (25 km) und rot (19 km)). Bei größerer Emissionshöhe steigt die vertikale Erstreckung der Sulfatschicht. Dabei steigt die Strahlungswirksamkeit um etwa zusätzliche 30%. Mit zunehmender Emissionsstärke sinkt der Betrag der am Boden ankommenden solaren Einstrahlung. Durch die gleichzeitig anwachsenden Teilchengrößen sinkt aber die Effektivität: Für die Reduktion von -

0.75 W/m<sup>2</sup> reichen Emissionen von 1 Mt S/Jahr (rote Kurve). Für die gut doppelt so starke Reduktion von -1.88 W/m<sup>2</sup> werden

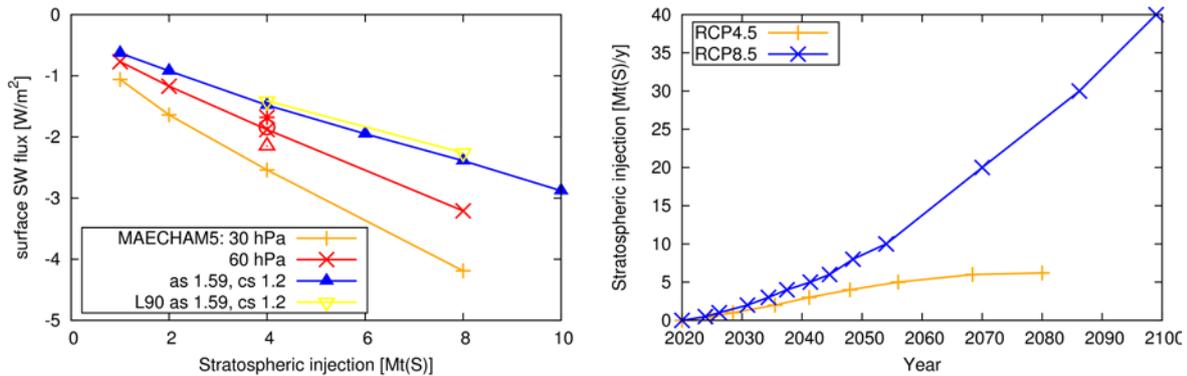


Abb. 6.1: Links: Reduktion der solaren Einstrahlung am Erdboden in Abhängigkeit von der Emissionsstärke und verschiedener Emissionsszenarien. Variiert wurde die Höhe der Emissionen (60 hPa (rot) und 30 hPa (orange)), die Emissionsregion (rotes Dreieck und roter Stern), genaueres siehe Niemeier et al. (2011), die Größenverteilung der Aerosole (blau) und die vertikale Modellauflösung (gelb). Rechts: Abschätzung der Sulfatmissionen pro Jahr, die gemäß MPI-ESM benötigt würde, um die Erwärmung durch ansteigende Emissionen ab dem Jahr 2020 auszugleichen. Die orange Kurve zeigt eine Abschätzung der Emissionsstärke bei einem mittleren Szenario (RCP4.5), die blaue Kurve unter Bedingungen, die in etwa einem weiterhin gleichbleibenden Anstieg der Emissionen wie zu Beginn des 21. Jahrhundert entsprechen (RCP8.5).

jedoch Emissionen von 4 Mt S/Jahr benötigt. Damit sinkt die Wirksamkeit des SRMs pro zusätzlich emittierter Megatonne Schwefel. Diese Zahlen sind Modell spezifisch. Vergleiche zwischen verschiedenen Modellen (English et al, 2012; Niemeier et al 2011) ergeben Unterschiede von 50% bis 100% in der Wirksamkeit der Strahlungsreduzierung bei gleicher Emissionsstärke.

### 6.2.2 Übersicht der durchgeführten Simulationen

Diesen Abschätzungen folgend führten wir Simulationen für 2Mt S, 4 Mt S und 8 Mt S pro Jahr durch, wobei die Schwefelmenge in Form des Vorläufergases SO<sub>2</sub> eingebracht wird. Die Simulationen wurden mit einer horizontalen Auflösung von 2.1° x 2.1° (T42) und 90 vertikalen Schichten, bis 0,01 hPa durchgeführt. Die Simulationsdauer betrug mit ECHAM5-HAM 30 Jahre, mit dem wesentlich rechenzeitaufwändigerem EMAC 7 bis 13 Jahre. Emittiert wurde in verschiedenen Höhen. Zur Abschätzung der Auswirkungen auf die Ozonschicht ist eine Emissionshöhe von 25 km (ca 30 hPa) angenommen worden. So überlagern sich Sulfat- und Ozonschicht stärker, als wenn in der Höhe von 60 hPa (ca. 19 km) emittiert wird, wie es in den ECHAM5-HAM Simulationen angenommen wurde. 60 hPa ließen sich zwar eventuell noch mit Flugzeugen erreichen, es ist auf dieser Höhe jedoch noch mit teils erheblichen Verlusten an Material durch Transport in die Troposphäre zu rechnen. Die Eingabe am Äquator stellt sicher, dass das eingebrachte Material sich im Jahresmittel zu gleichen Teilen auf beide Hemisphären verteilt. Zur Vereinfachung gehen wir von einer zirkumäquatorialen Eingabe aus. SO<sub>2</sub> wird vom Modell effektiv über die Nukleation von H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> in neue Partikel umgewandelt. Die Injektion von

SO<sub>2</sub> besitzt gegenüber H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> den Vorteil, dass es als sogenannte Vorläuferspezies großskalig zunächst in H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> umgewandelt werden muss, so dass weniger subskalige Effekte berücksichtigt werden müssen, welche unter Umständen nicht vom Modell reproduziert werden können (Pierce et al., 2009; English et al., 2012). Die Tabellen 3 und 4 geben einen Überblick über die durchgeführten Simulationen und eine sehr kurze Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse.

Tab. 3: Simulationen zum Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf das Ozon mit dem Model EMAC, welches neben Aerosolmikrophysik auch eine Gasphasenchemie umfasst.

Emission Mt S/Jahr	Strahlungs- kopplung	Einfluss auf PSC	Transport	Ozon	QBO Westphase
2	ja	nein	Transport vorwiegend in die Südhemisphäre durch Abschwächung des südlichen Polarwirbels	Tendenz der Zunahme am Südpol	leicht verlängert bzw. nicht bis 50 hPa hinunterreichend
4	ja	nein	mit den Jahren abnehmender Transport zu den Polen, vermutlich durch zunehmenden QBO Einfluss	deutliche Abnahme am Südpol	konstante Westphase zwischen 50 hPa und 30 hPa Höhe
8	ja	nein	mit den Jahren abnehmender Transport zu den Polen, vermutlich durch zunehmenden QBO Einfluss	deutliche Abnahme am Südpol	konstante Westphase zwischen 50 hPa und 5 hPa Höhe
2	nein	nein	Transport vorwiegend in die Nordhemisphäre	Abnahme am Südpol	nicht beeinflusst
2	ja	ja	Transport in beide Hemisphären	deutliche Abnahme am Südpol	leicht verlängert bzw. nicht bis 50 hPa hinunterreichend

Tab. 4: Simulationen zum Einfluss der stratosphärischen Sulfatschicht auf die dynamischen Prozesse der Stratosphäre mit dem Modell ECHAM5-HAM, welches lediglich mit einer Aerosolmikrophysik gekoppelt ist.

<b>Emission Mt S/Jahr</b>	<b>Strahlungs- kopplung</b>	<b>Einfluss auf PSC</b>	<b>Transport</b>	<b>Ozon</b>	<b>QBO Westphase</b>
<b>4</b>	ja	nein	Abhängig von der Phase der QBO: Höhere Sulfatkonzentrationen in der Südhemisphäre in der QBO Westphase als in der QBO Ostphase. In der Nordhemisphäre umgekehrt.	vorgegeben	deutlich verlängert zwischen 50 hPa und 30 hPa
<b>8</b>	ja	nein	normierte Sulfatkonzentration in der Nordhemisphäre geringer als in der 4 Mt S Simulation	vorgegeben	Konstante Westphase zwischen 50 hPa und 30 hPa

## **7 Auswirkungen von stratosphärischem Geoengineering auf das Ozon**

In diesem Kapitel werden die Auswirkungen von Geoengineering auf das stratosphärische Ozon eingehend untersucht. Die Auswirkungen sollen zunächst als Funktion der eingebrachten Menge an Sulfat quantifiziert werden. Anschließend sollen bestimmte Aspekte beleuchtet werden, wie die zugrundeliegenden chemischen Mechanismen, die Wechselwirkungen zwischen den Strahlungseigenschaften der Aerosole, der stratosphärischen Zirkulation und der Atmosphärenchemie. Diese Aspekte sollen als Funktion bestimmter modelltechnischer Faktoren im Rahmen einer Sensitivitätsstudie diskutiert werden.

### **7.1 Auswirkungen in Abhängigkeit von der eingebrachten Sulfatmenge**

#### **7.1.1 Auswirkungen im mehrjährigen zonalen Mittel**

Abbildung 7.1a zeigt den Einfluss des Geoengineering auf die Ozonsäule der Stratosphäre in Abhängigkeit von der eingegebenen Menge Schwefel im zonalen und mehrjährigen Mittel. Dargestellt wird die Anomalie der stratosphärischen Ozonsäule relativ zum mehrjährigen Mittel des Kontrolllaufs ohne Geoengineering. Als Ozonsäule bezeichnet man die vertikal integrierte Menge Ozon, diese wird oft in ‚Dobson Units‘ (DU) angegeben: 100 DU entsprechen einer Säule von 1 mm bei 1 Atmosphäre Druck und einer Temperatur von 298.15 K.

Im mehrjährigen Mittel lassen sich folgende Eigenschaften des Einflusses des Geoengineering auf die Ozonsäule zusammenfassen:

- 1) Meridional lassen sich Bereiche der Zunahme und der Abnahme unterscheiden: (a) leichte Abnahme über dem Äquator, (b) leichte Zunahme in den mittleren Breiten, und (c) Abnahme über den Polen, außer für den 2 Mt-Lauf am Südpol.
- 2) Der Bereich der äquatorialen Abnahme breitet sich mit zunehmender Emissionsmenge tendenziell polwärts aus. Der polare Bereich der Abnahme vertieft sich mit zunehmender Menge, scheint jedoch bereits bei 4 Mt S pro Jahr ein Maximum zu erreichen.
- 3) Insgesamt sind die beobachteten Effekte, Zunahmen und Abnahmen, im Vergleich zur natürlichen inter- und intraannuellen Variabilität des stratosphärischen Ozons relativ gering (<10% Abnahme, Maximum am Südpol, <5% Zunahme, Maximum über den nördlichen gemäßigten Breiten).

Wie in Abbildung 7.1b ersichtlich, befindet sich am Ort der Eingabe am Äquator ein absolutes Maximum der stratosphärischen Aerosolsäule. Dieses nimmt in etwa proportional zur eingebrachten Sulfatmenge zu. Über den Subtropen und den gemäßigten Breiten befindet sich ein Minimum respektive ein sekundäres Maximum. Außerhalb des Äquatorbereichs nimmt die Aerosolsäule geringer als proportional zu: bei einer Vervielfachung der Eingabemenge von 2 auf 8 Mt verdoppelt sich lediglich die Aerosolsäule. Hierbei handelt es sich um einen bekannten mikrophysikalischen Effekt (e.g., Niemeier et al., 2011). Mit zunehmender Menge werden nicht im gleichen Maße neue Partikel gebildet, sondern das Material kondensiert bevorzugt auf bereits bestehende Partikel. Außerdem koagulieren die Partikel mit zunehmender Anzahl schneller. Die nun im Durchschnitt größeren Partikel sinken schneller ab

und besitzen daher eine kürzere Lebenszeit, sodass sich die Menge von polwärts transportiertem Material verringert.

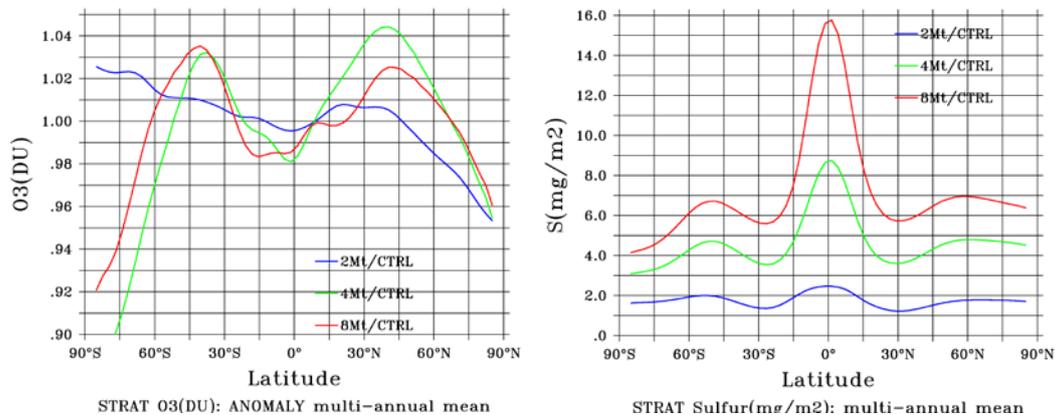


Abb. 7.1: (a) zonale Anomalie der Ozonsäule im Vergleich zum Kontrolllauf (links) und (b) vertikal integrierte Sulfatmasse der Aerosolphase (in mg/m<sup>2</sup>, rechts) im Jahresdurchschnitt der Jahre 2003-2006, 2004-2011 und 2003-2008, bei einer Injektionsrate von respektive 2, 4 und 8 Mt S pro Jahr.

Ein Vergleich der Abbildungen 7.1a und 7.1b zeigt, dass es zonal keine einfache Korrelation zwischen der Variation der Ozonsäule und der Aerosolmenge gibt. Insbesondere über dem Südpol, wo die Aerosolsäule teilweise ein absolutes Minimum erreicht, ist der relative Abbau des Ozons bei den 4 und 8 Mt-Läufen besonders ausgeprägt, während beim 2 Mt-Lauf das Ozon über dem Südpol sogar im Durchschnitt erhöht ist. Diese Umstände deuten auf das Vorhandensein von komplexen chemischen und dynamischen Prozessen hin, die das Geschehen dominieren.

### 7.1.2 Zeitliche Entwicklung der Auswirkungen

Abbildung 7.2 zeigt die zeitliche Evolution der Ozonsäule sowohl in Absolutwerten, als auch relativ zum Referenzlauf. Die Ozonsäule weist eine charakteristische intranannuelle Variabilität auf. Auf beiden Hemisphären bildet sich zur Winterzeit in den mittleren bis hohen Breiten jeweils ein Maximum aus. Über der Antarktis bildet sich gegen Ende des Winters ein charakteristisches Minimum, das sogenannte Ozonloch. Das Ozonloch ist mit dem Auftreten eines ausgedehnten Polarwirbels in der antarktischen Stratosphäre verbunden, in welchem besondere Bedingungen der Ozonchemie vorherrschen (siehe dazu auch Kapitel 4). Der Polarwirbel blockiert den Transport der Spurenstoffe bis in hohe Breiten und das Maximum bei 60° S ist eine kombinierte Folge des im Winter erhöhten meridionalen Transportes und dieser Transportbarriere. Der arktische Polarwirbel ist aufgrund verschiedener geographischer Voraussetzungen weit weniger stabil, so dass es im Allgemeinen nicht zur Ausbildung eines ausgeprägten arktischen Ozonlochs kommt (siehe Kap. 5). Über den Tropen und Subtropen lässt sich keine intraannuelle Variabilität ausmachen, beziehungsweise ist diese weitaus geringer ausgeprägt. Über diesen Gebieten sind die Ozonkonzentrationen weniger durch den Transport bestimmt, sondern das Ozon wird vielmehr lokal gebildet.

Durch Vergleich mit dem Referenzlauf lassen sich langfristig zwei sich überlagernde Effekte mit Bezug auf die zeitliche Evolution der Auswirkungen des Geoengineering auf das Ozon über mehrere Jahre hinweg unterscheiden:

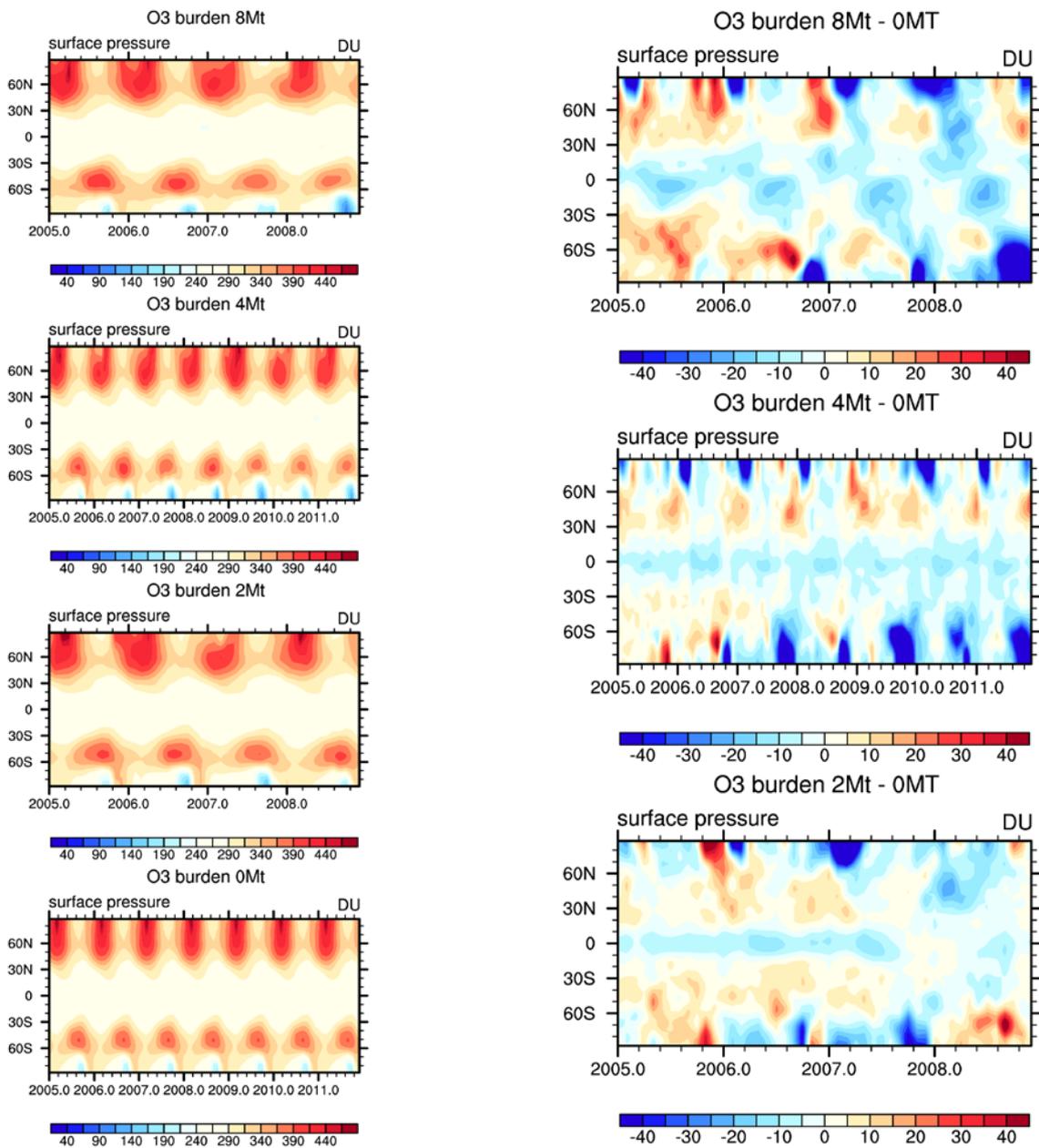


Abb. 7.2: Zeitliche Evolution der zonal gemittelten Ozonsäule (DU) als Funktion der geographischen Breite, für die Injektionsszenarien von 2, 4 und 8 Mt S pro Jahr. Absolute Werte inkl. Kontrolllauf (links), sowie Differenzen zum Kontrolllauf (rechts). Man beachte die hohe interannuelle Variabilität des polaren Ozons beim 2 Mt Lauf, während die 4 und 8 Mt Läufe einen eindeutigen Trend aufweisen.

1) Zum einen zeigt sich eine hohe interannuelle Variabilität der Ozonsäule im außertropischen, besonders im polaren Bereich. Die interannuelle Variabilität kann in manchen Jahren die Auswirkungen des Geoengineering komplett überlagern, insbesondere bei niedrigen Injektionsraten.

2) Zum anderen zeigt sich ein mit zunehmender Injektionsrate verstärkter Trend der Abnahme des polaren Ozons. Dieser Trend zeigt sich sowohl über der Süd- als auch über der

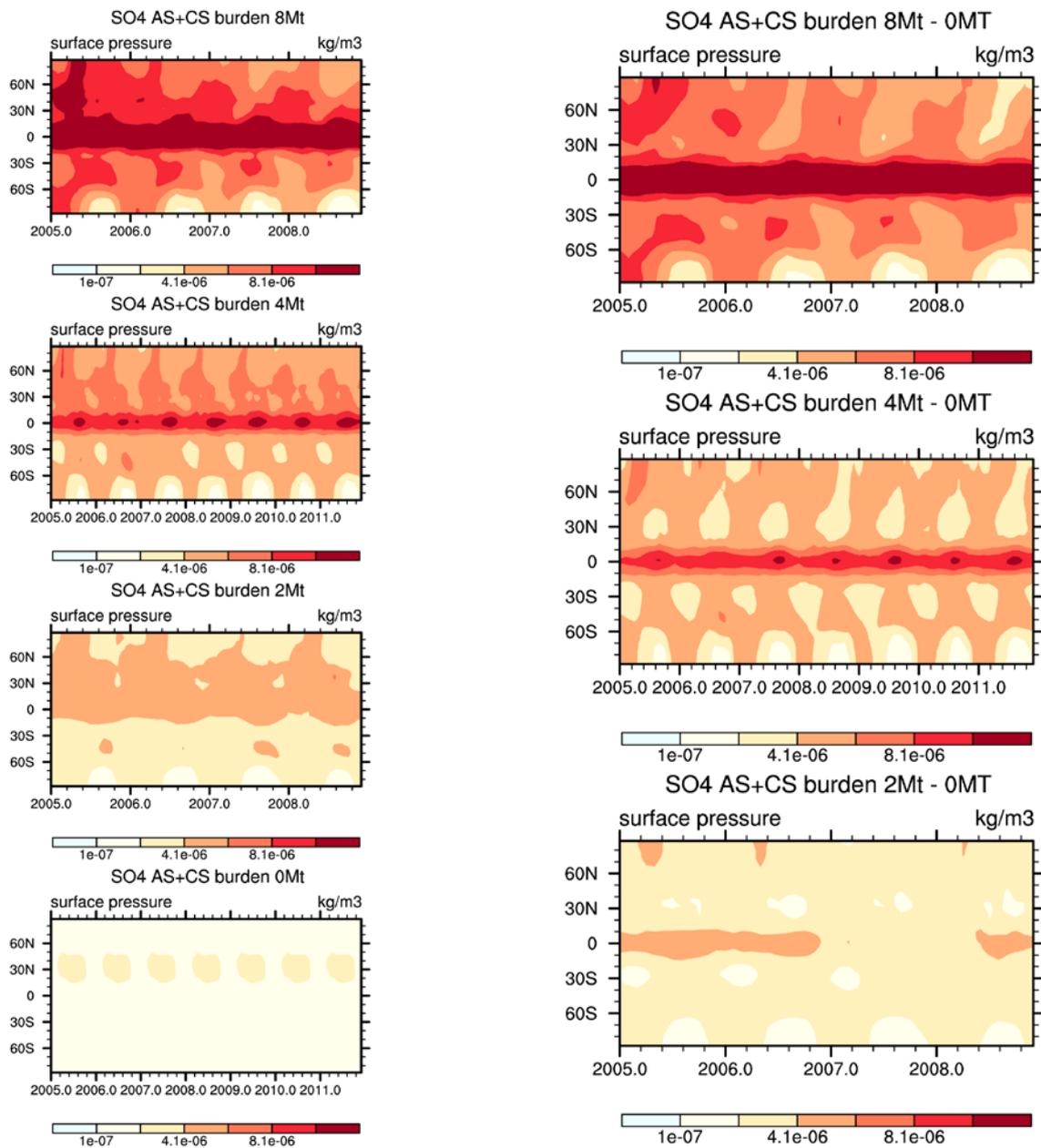


Abb. 7.3: Wie Abbildung 7.2, jedoch für die Aerosolsulfatsäule (mg/m<sup>2</sup>). Für die 4 und 8 Mt S Läufe nimmt der meridionale Transport zu beiden Hemisphären hin im Lauf der Zeit ab.

Nordhemisphäre, obwohl die Bedingungen in Hinblick auf die Stabilität des Polarwirbels unterschiedlich sind. Deshalb kann es sich nicht primär um einen chemischen Effekt handeln, sondern es muss dynamisch bedingt sein.

Aus dem Kontext von tropischen Vulkanausbrüchen weiß man, dass die Erwärmung der Stratosphäre durch die Sulfatschicht tendenziell zu einer Beschleunigung des meridionalen Transportes führt (Robock, 2000). Dieser Trend scheint sich mit der Zeit immer weiter abzuwächen, wie der Vergleich mit der Aerosolsäule in Abbildung 7.3 zeigt. Während sich das winterliche Maximum der Ozonsäule in den gemäßigten Breiten immer weiter reduziert, scheint sich über der Antarktis das Ozonloch tendenziell nach einer anfänglichen Phase der

Abschwächung wieder zu vertiefen, was womöglich auf eine Stabilisierung des Polarwirbels hindeutet und auch im Zusammenhang mit Änderungen der QBO steht (siehe Kap. 8). Wir werden im folgenden Abschnitt versuchen, diesen komplexen Ablauf der Effekte in Hinsicht auf das Zusammenwirken zwischen der Hitzewirkung des Aerosols, der Ozonchemie, der stratosphärischen Zirkulation und des Polarwirbels zu erklären.

## 7.2 Chemische und dynamische Effekte

### 7.2.1 Grundlegende Überlegungen zur Unterscheidung zwischen chemischen und dynamischen Effekten

In diesem Abschnitt sollen die dynamischen und chemischen Effekte des Geoengineering auf die stratosphärische Ozonschicht im Detail untersucht und gegeneinander abgegrenzt werden. Letzteres läßt sich auf Modellebene relativ einfach bewerkstelligen, indem Vergleichsläufe erstellt werden, in welchen die Beeinträchtigung der lokalen stratosphärischen Strahlungsbilanz durch das geoengineerte Aerosol unterbunden wird.

Des Weiteren soll die Sensitivität der Resultate auf bestimmte Eigenschaften des Sulfataerosols getestet werden. Ein Aspekt, der bei vorhergehenden Studien gänzlich ausgeblendet wurde, ist der Einfluss der Aerosolpartikel auf die polaren stratosphärischen Wolken. Wie in Kapitel 4 beschrieben, ist insbesondere die Mikrophysik dieser Wolken noch größtenteils unbekannt. Aus vereinzelt Studien, insbesondere Deshler et al. (1994) ist jedoch bekannt, dass Vulkanausbrüche die mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC scheinbar massiv beeinträchtigen können. Auf Modellebene wird zwischen Wolkenpartikeln vom Typ Ib sowie Partikeln vom Typ Ia und II unterschieden. Das Zusammenfassen der Partikel vom Typ Ia und II ist insofern sinnvoll, als dass diese Partikel in ihrem Ursprung in einem gewissen Maße miteinander verflochten zu sein scheinen. Beide Typen befinden sich zumindest teilweise in der Festphase und koagulieren auch nicht, oder zumindest vermindert. Die chemische Gleichgewichtszusammensetzung der Partikel vom Typ Ib wird im Modell explizit berechnet, während Anzahldichte und somit der Partikelradius aufgrund einer auf empirischen Daten beruhenden Parametrisierung berechnet werden. Der der Atmosphäre durch die Partikel vom Typ Ib real entzogene Wasserdampf wurde bis jetzt auf Modellebene nicht in Betracht gezogen, sondern lediglich klimatologisch berechnet. Um diesem Umstand Rechnung zu tragen, wurde am Modell eine entsprechende Korrektur bei der Berechnung des atmosphärischen Wasserdampfs vorgenommen.

Die mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel vom Typ Ia und II werden im Modell grob vereinfacht dargestellt. Zunächst wird die Gesamtmasse der Partikel ermittelt, anschliessend wird der Durchmesser der Partikel unter der Annahme berechnet, dass die Anzahldichte der Partikel  $0.03 \text{ cm}^{-3}$  beträgt. Liegt der Durchmesser nun über dem Wert von 100 nm, so wird die Anzahldichte von  $0.03 \text{ cm}^{-3}$  aufrechterhalten. Liegt der Wert niedriger, so wird die Anzahldichte soweit reduziert bis ein Durchmesser von 100 nm erreicht wird. Um dem Einfluss des Geoengineering auf die mikrophysikalischen Eigenschaften der Festpartikel Rechnung zu tragen, gehen wir im Rahmen der simplen Darstellung auf Modellebene von der möglichst einfachen, jedoch auch realistischen Annahme aus, dass sich die Anzahldichte entsprechend der Variation der Aerosolanzahldichte verändert. Durch das Geoengineering erhöht sich die

Anzahldichte der Aerosole in etwa um eine Größenordnung, so dass wir von einer veränderten Anzahldichte der

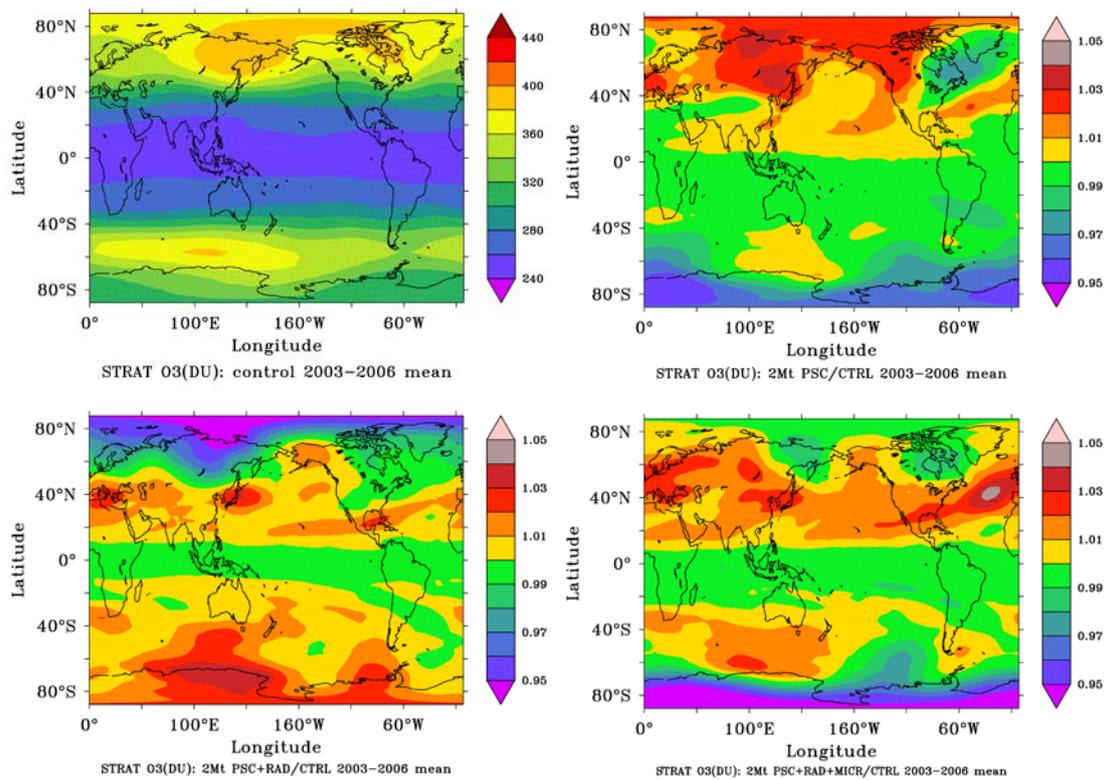


Abb. 7.4: Geographische Verteilung der Ozonsäule des 2 Mt Laufs im Durchschnitt der Jahre 2003 bis 2006. Gezeigt werden (a) die absoluten Referenzwerte (DU) aus dem Kontrolllauf (oben links), sowie die Anomalien (b) des PSC Laufs (oben rechts), (c) des PSC+HEAT Laufs (unten links), und (d) des PSC+HEAT+MICRO Laufs, allesamt relativ zum Kontrolllauf.

Partikeldichte vom Typ Ia und II von  $0.3 \text{ cm}^{-3}$  ausgehen. Dieser Wert entspricht in etwa den im Kontext von Vulkanausbrüchen beobachteten Veränderungen der Eigenschaften der stratosphärischen Wolken (Deshler et al., 2004).

Da für höhere Injektionsraten ein zusätzlicher Trend besteht (siehe oben), indem der Ozongehalt der Stratosphäre über der Antarktis zunächst tendenziell abnimmt, sowie später wieder zunimmt, soll die folgende Analyse zur Unterscheidung zwischen chemischen/mikrophysikalischen und dynamischen Effekten zum besseren Verständnis mit einer Injektionsrate von 2 Mt pro Jahr vorgenommen werden.

### 7.2.2 Geographische und intraannuelle Abhängigkeiten

Abbildung 7.4 und 7.5 zeigen die durchschnittliche geographische Abhängigkeit der stratosphärischen Ozonsäule und der vertikal integrierten Aerosolsulfatmasse als Mittelwert der Jahre 2003 bis einschliesslich 2006 für (a) den Kontrolllauf, unter (b) den Bedingungen der Korrektur des atmosphärischen Wasserdampfgehalts unter dem Einfluss der polaren stratosphärischen Wolken (PSC), (c) der zusätzlichen Berücksichtigung der Strahlungseigenschaften der Aerosolpartikel (HEAT), sowie (d) der zusätzlich angepassten Partikeldichte vom Typ Ia und II der stratosphärischen Wolken (MICRO). Der Einfluss der

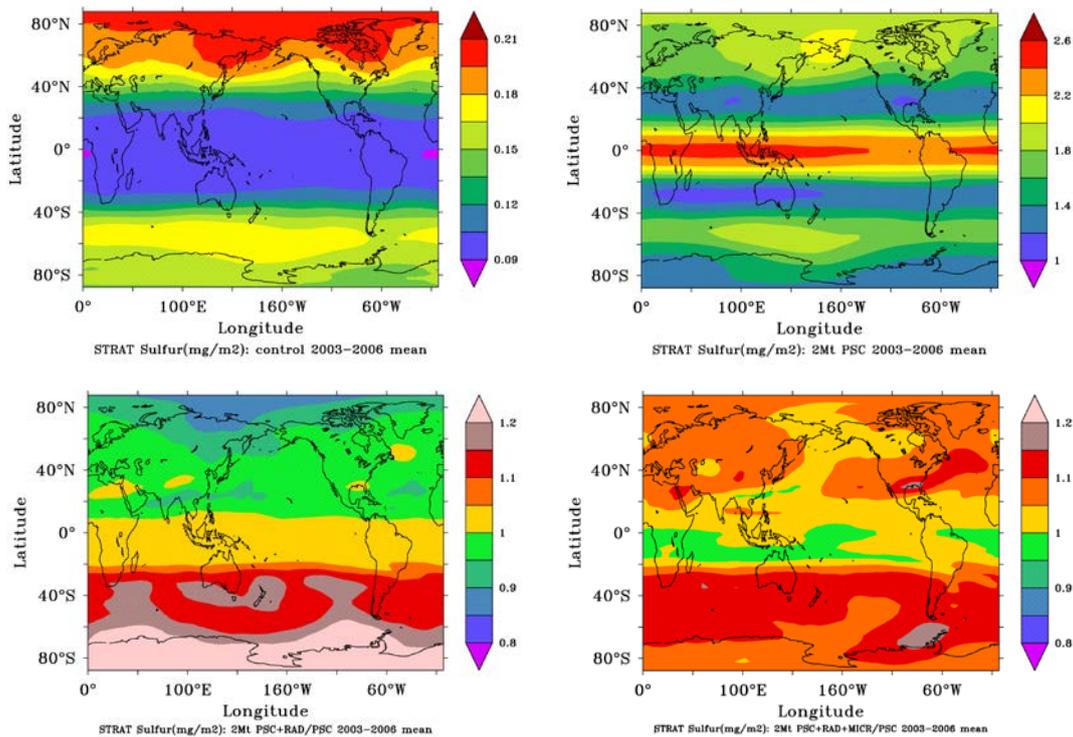


Abb. 7.5: Geographische Verteilung der vertikal integrierten Aerosolsulfatmasse (mg/m<sup>2</sup>) des 2 Mt Laufs im Durchschnitt der Jahre 2003 bis 2006. Gezeigt werden (a) die absoluten Referenzwerte des Kontrolllaufs (oben links), sowie (b) des PSC Laufs (oben rechts), die Anomalien (c) des PSC+HEAT Laufs (unten links), und (d) des PSC+HEAT+MICRO Laufs relativ zu (B). Man beachte die unterschiedliche Skala der Graphiken (a) und (b).

expliziten Berücksichtigung des Wassergehalts der stratosphärischen Wolken hat sich durch den Vergleich mit Simulationen ohne diesen Faktor als vernachlässigbar herausgestellt. Aus diesem Grund wird in der nun folgenden Analyse die Wirkung des veränderten Wasserdampfgehalts nicht diskutiert. Der PSC-Lauf dient daher einerseits der Abschätzung des Einflusses der chemischen Prozesse im Vergleich zum Referenzlauf ohne geoengineertes Aerosol sowie andererseits als Vergleichswert zur Abschätzung des zusätzlichen Einflusses der Wärmewirkung des Aerosols im HEAT-Lauf.

Ohne Wärmewirkung des Aerosols (Abbildung 7.4b) kommt es im Vergleich zum Referenzlauf zu einer hemisphärisch gegensätzlichen Reaktion der stratosphärischen Ozonschicht, welche an den Polen besonders ausgeprägt ist. Während die Ozonsäule über der Südhemisphäre reduziert wird, kommt es zu einer entsprechenden Zunahme über der Nordhemisphäre. In Abwesenheit primärer dynamischer Effekte muss die differentielle Entwicklung der beiden Hemisphären im Wesentlichen der Spezifität der Ozonchemie an den Polen entsprechen. Als Erklärungsversuch dieses Umstands soll folgende Hypothese aufgestellt werden, welche im Folgenden weiter beleuchtet werden soll: Während die Ozonschicht der Antarktis durch die relative Stabilität des Polarwirbels bestimmt wird, werden die Ozonkonzentrationen unter den wärmeren Bedingungen der Arktis vor allem durch den Transport bestimmt. Der vermehrte chemische Ozonabbau unter dem Einfluss des geoengineerten Aerosols vermindert die Absorption von UV-Strahlung. Die folgende Temperaturabnahme festigt somit frühzeitig den antarktischen Polarwirbel, und hemmt somit tendenziell den Transport zum Südpol. In dessen Folge steht

mehr injiziertes Sulfat und über den Tropen gebildetes Ozon für den Transport in Richtung Norden zur Verfügung, wir haben es folglich mit einem Wettbewerbseffekt zwischen beiden Hemisphären zu tun

Wird die Wärmewirkung nun eingeschaltet (Abb. 7.4c), ändert sich das Bild grundsätzlich ins Gegenteil. Der Ozongehalt über der Antarktis ist nun erhöht, während er über der Arktis abnimmt. Abb. 7.5c zeigt, dass das antarktische Ozon zunimmt obwohl das Aerosolsulfat ebenfalls um mehr als 20% zunimmt, wodurch eindrücklich der primäre Einfluss der Stabilität des Polarwirbels auf das Ozon veranschaulicht wird. Unserer obigen Interpretation folgend, würde das nach Süden transportierte Aerosol durch seine Hitzewirkung (siehe unten) den Polarwirbel so weit abschwächen, dass durch das relative Wegfallen der Transportbarriere nun vermehrt tropisches Ozon über die Antarktis einfließen kann und dessen lokaler chemischer Abbau trotz erhöhter Aerosolmasse insgesamt durch die Reduzierung der PSC gehemmt wird. Durch den Wettbewerb zwischen beiden Hemisphären um das Sulfataerosol und das tropische Ozon, ist nun sowohl die Aerosolschicht als auch die Ozonsäule über der Arktis entsprechend vermindert.

Geht man nun zusätzlich von veränderten mikrophysikalischen Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken aus (Abb. 7.4d und 7.5d), so ändert sich das Bild wiederum grundlegend. Im Gegensatz zu den beiden vorhergehenden besteht in diesem Fall kein ausgesprochener Kontrast mehr zwischen den Effekten auf der Süd- und Nordhemisphäre. Sowohl über der Arktis als auch über der Antarktis bewirkt das Aerosol, und somit die polaren Wolken, einen verstärkten Ozonabbau, welcher durch die tendenzielle Stabilisierung beider Polarwirbel bedingt ist. Gleichzeitig ist die Aerosolmasse durch die Verstärkung des meridionalen Transports in beiden Hemisphären erhöht. Hierbei handelt es sich um einen kombinierten Effekt. Zum einen führt das Anheben der Aerosolschicht über dem Äquator (siehe unten) in Analogie zum HEAT-Lauf zu geringeren Verlusten in die Troposphäre und daher zu einem erhöhten meridionalen Transport auch im Falle eines unveränderten Windfelds. Zum anderen müssen zu einem gewissen Grade ebenfalls dynamische Effekte vorhanden sein, ansonsten ließe sich die hemisphärische Asymmetrie des HEAT-Laufs nicht erklären.

Abbildung 7.6 dient der zonal gemittelten Zusammenfassung der vorhergehenden Resultate. Auffällig ist, dass bei Zuschaltung der mikrophysikalischen Effekte der PSC für den 2 Mt-Lauf im Vergleich zu den 4 und 8 Mt-Läufen der Abb. 7.1 in Bezug auf die Anomalie der Ozonschicht ein qualitativ ähnliches Resultat erzielt wird. Es scheint, dass für den 2 Mt-Lauf ein gewisser Schwellenwert unterschritten wurde, unterhalb welchem der Einfluss der Strahlungseigenschaften des geoengineerten Aerosols auf die Stabilität des Polarwirbels gegenüber dessen chemischem Einfluss auf das Ozon dominiert. Abb. 7.6b zeigt dass die alleinige Hitzewirkung des Aerosols dessen stratosphärische Gesamtlast zwar erhöht, dessen Wirkung auf den antarktischen Polarwirbel jedoch eine hemisphärisch ungleiche Verteilung bewirkt. Erst bei zusätzlicher Stabilisierung des Polarwirbels infolge des zusätzlichen Ozonabbaus durch die veränderte Mikrophysik der PSC kommt es zu einer gleichmäßigeren Verteilung. Da der arktische Polarwirbel nicht im gleichen Maße stabilisiert wird, ist der zusätzliche Ozonabbau im MICRO-Lauf über dem Nordpol weniger ausgeprägt.

Abbildung 7.7 zeigt die veränderte Klimatologie der Ozonsäule als Funktion der Spezifikationen der Läufe PSC, HEAT und MICRO im Jahresrhythmus, während Abbildung 7.8 in

Analogie die Veränderung der Aerosolsulfatmasse darstellt. Der Kontrolllauf gibt die charakteristische

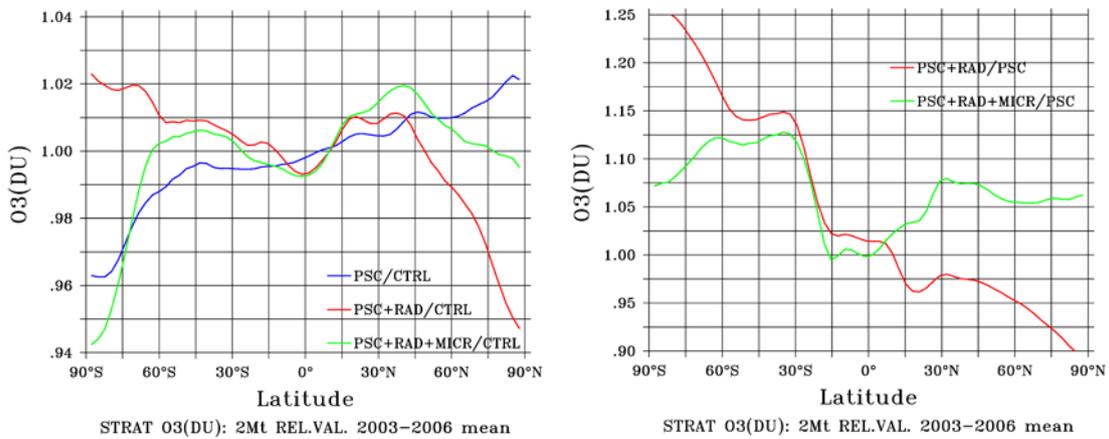


Abb. 7.6: Zonal gemittelte Anomalie der Ozonsäule relativ zum Kontrolllauf (a), und der vertikal integrierten Aerosolsulfatmasse relativ zum PSC-Lauf (b), im Jahresdurchschnitt der Jahre 2003-2006. Die Injektionsrate beträgt 2 Mt S pro Jahr.

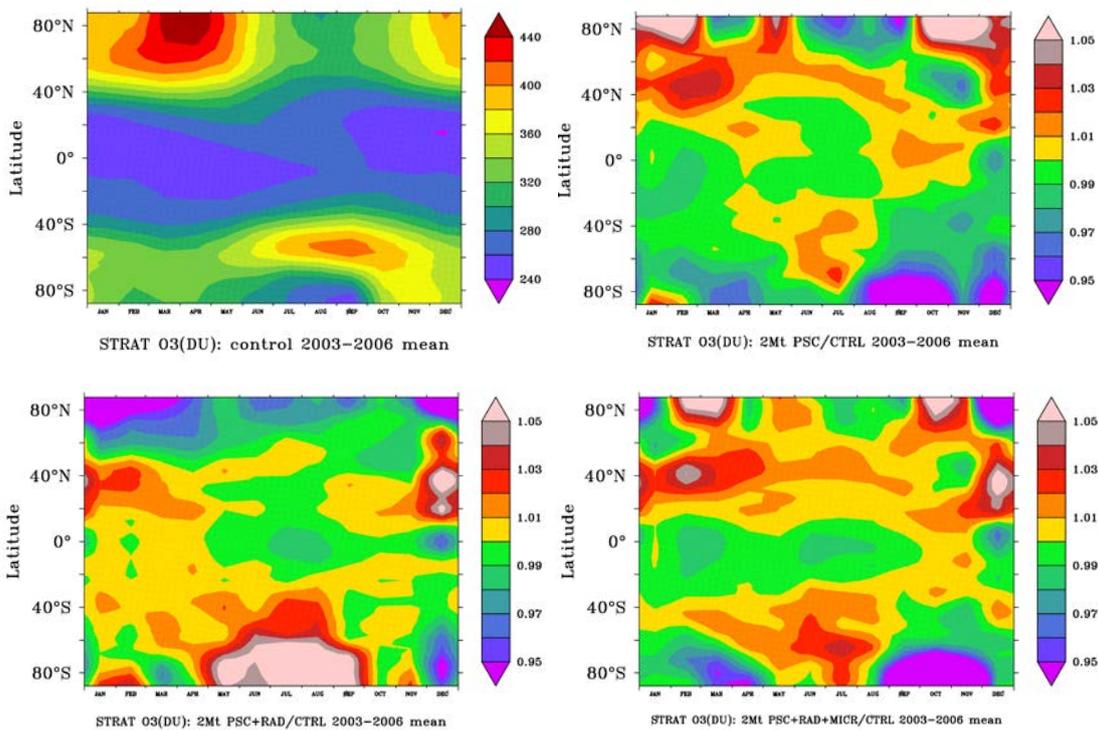


Abb. 7.7: Zonale Anomalie der Ozonsäule im Jahresverlauf und als Funktion der geographischen Breite bei Emission von 2 Mt S pro Jahr. Im Uhrzeigersinn, (a) Absolutwerte des Kontrolllaufs (oben links), und Relativwerte (b) des PSC Laufs, (c) des PSC+HEAT Laufs, und (d) des PSC+HEAT+MICRO Laufs.

intraannuelle Variabilität des Ozons und der Aerosolmasse wieder. Über der Arktis bildet sich das winterliche Maximum in Folge des beschleunigten meridionalen Transports erst im März aus. Hierbei handelt es sich nicht nur um einen Trägheitseffekt. Der arktische Polarwirbel ist im Allgemeinen nicht stabil genug, damit sich ein Ozonloch ausbildet, jedoch ausreichend, um die Ausbildung des winterlichen Maximums hinauszuzögern. Über der Südhemisphäre bildet sich

das Maximum entsprechend früher und ausgeprägter über den mittleren Breiten aus. Sobald sich der

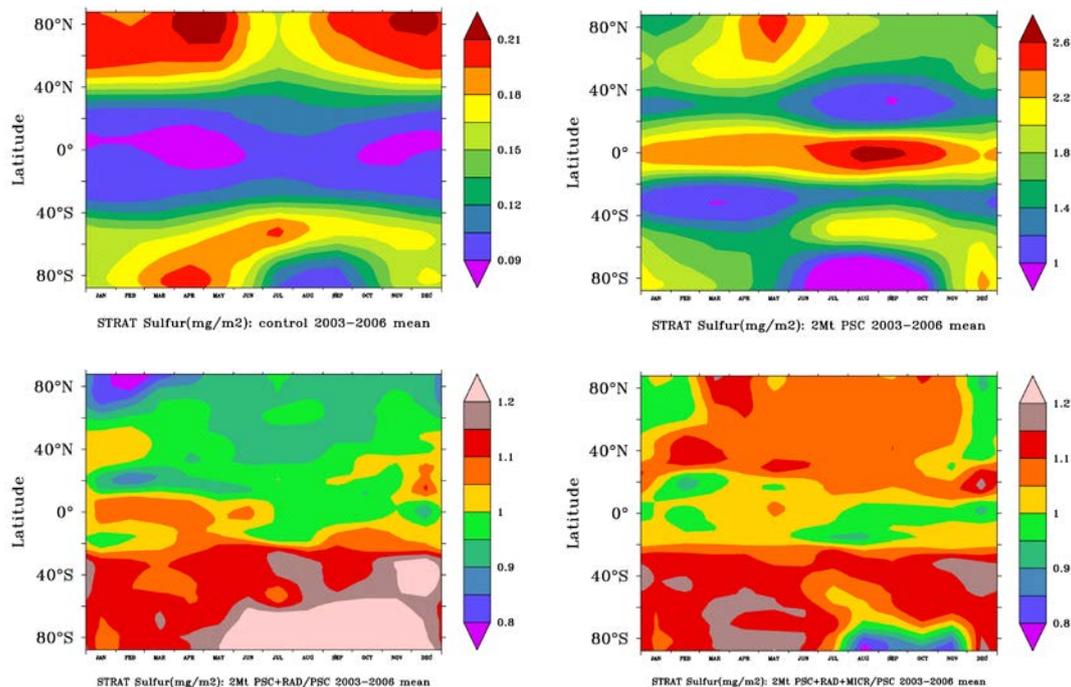


Abb. 7.8: Wie Abb. 7.7 jedoch für die Aerosolsulfatsäule (mg/m<sup>2</sup>), in (b) werden Absolutwerte gezeigt, (c) und (b) zeigen Relativwerte zu (b).

Polarwirbel auflöst, kann Luft über die Antarktis einströmen, die sich mit den dortigen ozonarmen Luftmassen vermischt. Die geoengineerten Läufe zeigen ein komplexes Bild, das auch durch die zeitliche Verschiebung der Abläufe im Jahresrhythmus bestimmt wird. In Abwesenheit der Hitzewirkung (PSC-Lauf), wirkt sich das geoengineerte Aerosol hauptsächlich (wie oben antizipiert) während der Winterzeit auf das polare Ozon aus. Unserem Erklärungsansatz folgend, wird der antarktische Polarwirbel stabilisiert und entsprechend verzögert erhöht sich die Ozonsäule durch den Konkurrenzeffekt über der Arktis. Abb. 7.8b zeigt durch die Ausbildung eines Maximums der Sulfatmasse wie die Stärkung des antarktischen Polarwirbels den meridionalen Transport zur Südhemisphäre verlangsamt. Wird die Hitzewirkung eingeschaltet, so nimmt die Sulfatmasse innerhalb des Polarwirbels um mehr als 20% zu, und zeigt somit eindrücklich dessen Abschwächung. Der Ozonabbau innerhalb des Polarwirbels kann allerdings nicht gänzlich unterdrückt werden. Durch den vermehrten Transport in die Südhemisphäre kommt es über den Konkurrenzeffekt zu einer Verstärkung des arktischen Polarwirbels, und entsprechend zu einer Verzögerung des Aufbaus des winterlichen Maximums über der Nordhemisphäre. Bei Berücksichtigung der Veränderung der mikrophysikalischen Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken durch das geoengineerte Aerosol kommt es zu einem kombinierten Effekt. Einerseits wird auf der Nordhemisphäre zum Zeitpunkt der maximalen Ausbildung des Polarwirbels vermehrt Ozon abgebaut, sowie das Ozonloch der Südhemisphäre vertieft. Andererseits bleibt der meridionale Transport im Vergleich zum PSC-Lauf beschleunigt, sodass die entsprechenden winterlichen Maxima der Aerosol- und Ozonsäule über den mittleren Breiten ausgeprägter sind. Die Bildung

des Ozonlochs auf der Südhemisphäre wird hinausgezögert, während sich das Maximum der Nordhemisphäre verspätet ausbildet.

### 7.2.3 Vertikale Abhängigkeiten

Abbildung 7.9a zeigt die vertikale Verteilung des Ozons im zonalen und zeitlichen Mittel für die Jahre 2003-2006. Die vertikale Achse ist eine logarithmische Druckschala, gezeigt wird der Bereich von der polaren Tropopause bis in den mittleren Bereich der Mesosphäre. Die Stratopause liegt bei etwa 1 hPa Druck, der Verlauf der Tropopause wird in Abbildung 7.10a durch den unteren Rand der geengineerten Aerosolschicht angezeigt. Die Ozonschicht folgt in einigem Abstand der Tropopause und befindet sich im unteren und mittleren Drittel der Stratosphäre. Der Ozongehalt wird in Dobson Units pro Gridbox angegeben. Da die vertikale Ausdehnung der Gridboxen in Metern in der Stratosphäre ungefähr konstant ist, sind die angegebenen Werte ungefähr proportional dem Gradienten der Ozonsäule. Eine Darstellung in Dobson Units macht insofern Sinn, als dass sich so die Relevanz der Variation des Mischungsverhältnisses für die gesamte Ozonsäule abschätzen läßt. Eine hohe Variation des Mischungsverhältnisses ist nicht unbedingt für die Ozonsäule relevant, da z.B in der oberen Stratosphäre zwar das Mischungsverhältnis des Ozons vergleichsweise hoch, die Dichte der Luft

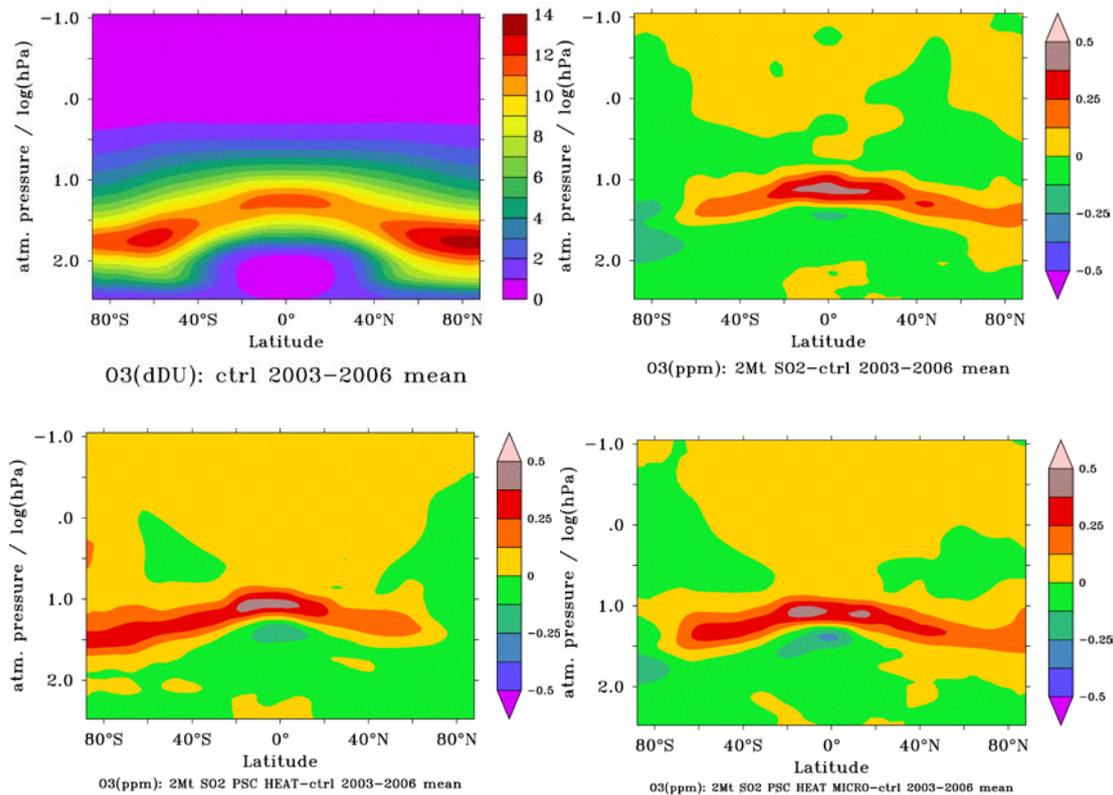


Abb. 7.9: Zonale Anomalie des molekularen Ozonmischungsverhältnisses (in ppm) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Mittel der Jahre 2003-2006. In (a) werden die Referenzwerte des Kontrolllaufs gezeigt (oben links). Um die Relevanz der Anomalie der Mischungsverhältnisse besser abschätzen zu können, werden die Referenzwerte in DU angegeben (siehe Text). Auf diese Weise wird die tatsächliche vertikale Verteilung der Ozonschicht gezeigt. Es folgen die Differenzen der Mischungsverhältnisse zum Referenzlauf im Uhrzeigersinn für (b) den PSC Lauf, (c) den PSC+HEAT Lauf, und (d) den PSC+HEAT+MICRO Lauf. Man beachte die logarithmische Druckachse in der Vertikalen.

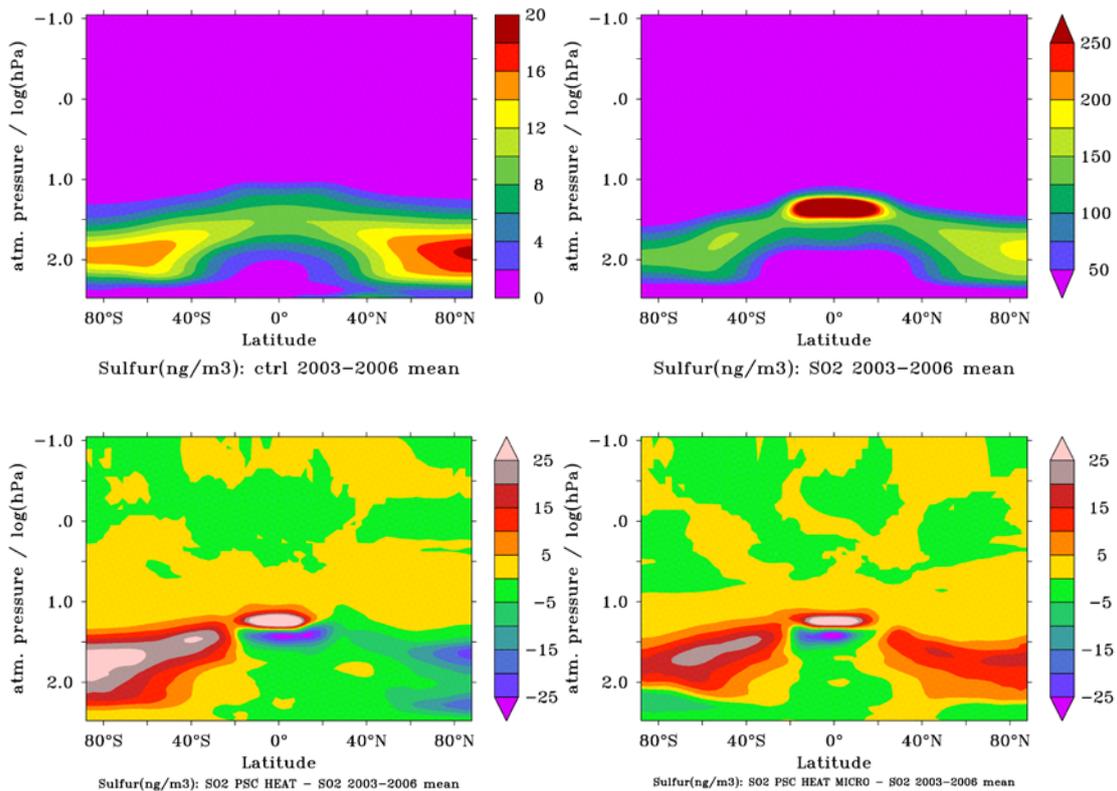


Abb. 7.10: Zonale Anomalie des Aerosolsulfatgehalts (ng/m<sup>3</sup>) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Mittel der Jahre 2003-2006. Zum Kontrolllauf und dem PSC-Lauf werden absolute Werte angegeben. Man beachte den Unterschied in der Skala. Zu den PSC+HEAT und PSC+HEAT+MICRO Läufen werden die Differenzen zum PSC-Lauf abgebildet. Siehe auch Abb. 7.9.

jedoch sehr gering ist. Die Wahl des Mischungsverhältnisses zur Darstellung der Variation des Ozons dient dem besseren Verständnis der chemischen Abläufe.

Abbildung 7.9b zeigt die Variation des Mischungsverhältnisses des Ozons für den 2 Mt S Lauf ohne Erwärmung des Aerosols (PSC) als Differenz zum Kontrolllauf. Der Bereich der höchsten Zunahme des Mischungsverhältnisses über dem Äquator liegt bei etwa 15 hPa, dies entspricht ungefähr einer Höhe von 28 km, d.h. etwa drei Kilometer oberhalb der Injektionshöhe des SO<sub>2</sub>, welcher sich bei ungefähr 25 hPa befindet. Der Mittelpunkt der Ozonschicht befindet sich bei etwa 20 hPa Druck (ca. 26.5 km), so dass der Injektionspunkt sich unmittelbar in der Ozonschicht befindet. Abbildungen 7.11b und 7.12b zeigen die jeweilige Variation des Mischungsverhältnisses von NO<sub>x</sub> und ClO (dargestellt als Summe von ClO und Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, letzteres ist jedoch außerhalb der Polargebiete irrelevant, siehe Kap. 4). Der Streifen der Zunahme des Mischungsverhältnisses des Ozons über dem Äquator und den mittleren Breiten deckt sich exakt mit jenem der Abnahme von NO<sub>x</sub>. Folglich ist die Zunahme des Ozons durch die Unterdrückung des NO<sub>x</sub>-Zyklus bedingt. Das geoengineerte Aerosol fungiert als Senke von NO<sub>x</sub>, welches sowohl heterogen über das sich in der Gasphase bildende N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> in die Aerosolphase aufgenommen wird, als auch direkt als HNO<sub>3</sub> in die Flüssigphase diffundiert. Der ClO<sub>x</sub>-Zyklus scheint im Bereich der Aerosolschicht (Abb. 7.10b) beschleunigt zu sein. ClO<sub>x</sub> wird der Atmosphäre durch das Aerosol zwar in Form von HCl entzogen, gleichzeitig beschleunigt die geringere Menge NO<sub>x</sub> jedoch den ClO<sub>x</sub>-Zyklus, wobei die

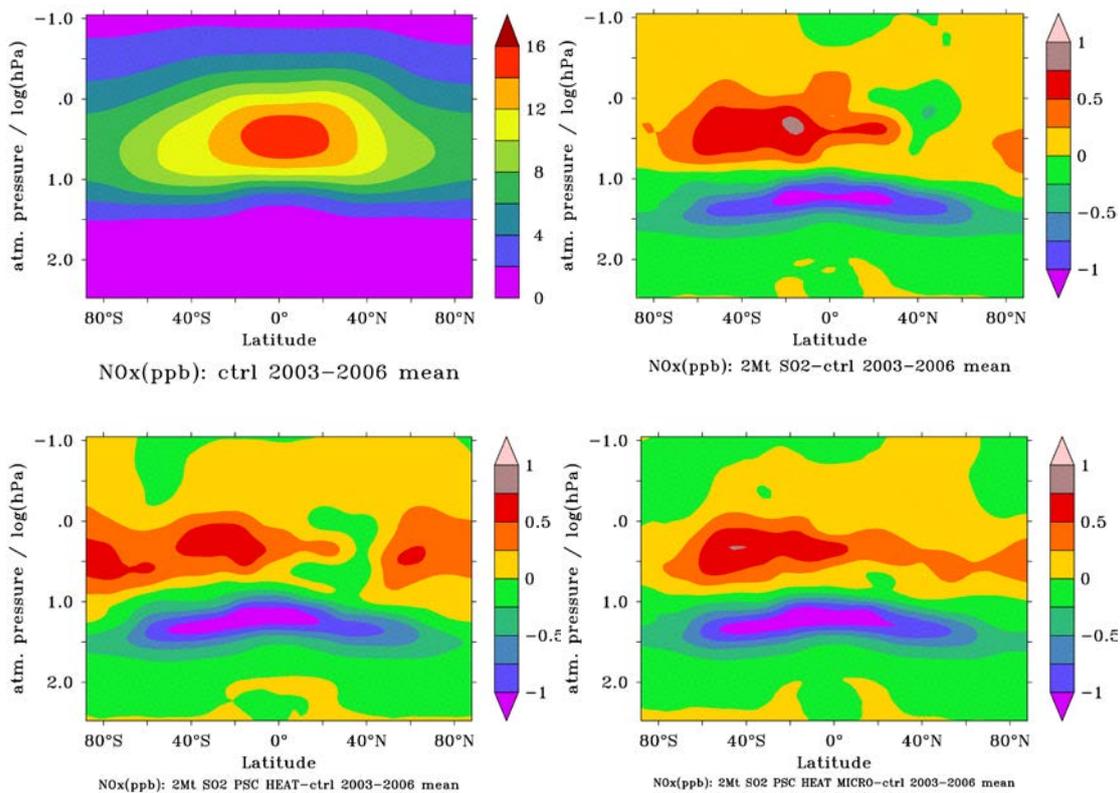


Abb. 7.11: Zonale Anomalie des Mischungsverhältnisses des NO<sub>x</sub> (in ppb) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Durchschnitt der Jahre 2003-2006 im Vergleich zum Kontrolllauf. Siehe auch Abb. 7.9.

Reservoirspezies ClONO<sub>2</sub> durch das Aerosol heterogen aktiviert wird (Abbildung 7.13b) und den ClO<sub>x</sub>-Zyklus noch zusätzlich antreibt. Insgesamt ist die Beschleunigung des ClO<sub>x</sub>-Zyklus gegenüber der Hemmung des NO<sub>x</sub>-Zyklus jedoch nur sekundär, wodurch in der Summe mehr Ozon abgebaut wird.

Dieses Resultat deckt sich weitestgehend mit den Ergebnissen der Geoengineeringstudien von Tilmes et al. (2009) und Aquila et al. (2014), wonach die Ozonchemie außerhalb der Polargebiete nicht durch den ClO<sub>x</sub>-Zyklus dominiert wird. Unterhalb des Bereiches der Zunahme des Ozonmischungsverhältnisses befindet sich am Äquator ein Bereich der begrenzten Abnahme des Ozons. Dieser befindet sich im unteren Höhenbereich der Ozonschicht und fällt daher weniger ins Gewicht. Der HO<sub>x</sub>-Zyklus ist insbesondere im unteren Bereich der Stratosphäre relevant, da hier der Feuchtegehalt der Luft höher ist. Das geoengineerte Aerosol bindet zwar Wasserdampf aus der Atmosphäre, wodurch der HO<sub>x</sub>-Zyklus in Analogie zu den NO<sub>x</sub> und ClO<sub>x</sub>-Zyklen gehemmt wird, gleichzeitig beschleunigt die geringere Menge NO<sub>x</sub> jedoch den HO<sub>x</sub>-Zyklus. Letzteres führt zu einer Nettobeschleunigung des HO<sub>x</sub>-Zyklus, während dieser wiederum in der unteren Stratosphäre gegenüber dem gehemmten NO<sub>x</sub>-Zyklus dominiert, und zu einer Nettoabnahme der Ozonkonzentration führt (siehe auch Tilmes et al., 2009).

Die Variation der Temperatur ist beim PSC-Lauf am Äquator und über den gemäßigten Breiten verhältnismäßig gering (Abbildung 7.14b). Anders sieht das Bild an den Polen aus. Über der Antarktis ist im Bereich der Ozonschicht die Temperatur im Jahresmittel um mehr als 1K

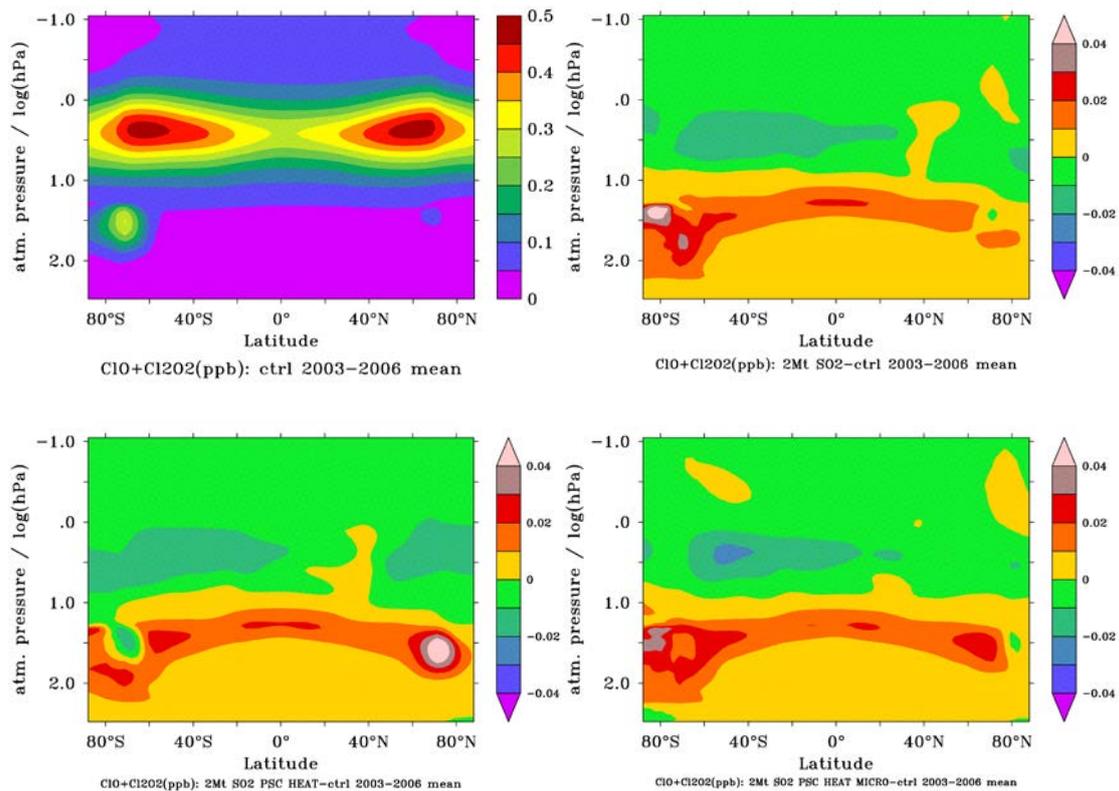


Abb. 7.12: Zonale Anomalie des Mischungsverhältnisses des  $\text{ClO}+\text{Cl}_2\text{O}_2$  (in ppb) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Durchschnitt der Jahre 2003-2006 im Vergleich zum Kontrolllauf.  $\text{Cl}_2\text{O}_2$  ist nur im Bereich der Pole augenscheinlich, und erscheint in den Graphiken als augenförmiges Gebilde bei etwa 30 hPa Druck auf ca.  $75^\circ$  Breite. Siehe auch Abb. 7.9.

reduziert. Dies steht in Verbindung mit einem erhöhten Ozonabbau durch die intensivierten  $\text{ClO}_x$ - und  $\text{Cl}_2\text{O}_2$ -Zyklen: Im Bereich der geoengineerten Aerosolschicht wird vermehrt  $\text{ClO}$  aus der Reservoirspezies freigesetzt. Der  $\text{NO}_x$ -Zyklus scheint nicht relevant beeinträchtigt zu sein. Die verringerte Temperatur führt zu einer Stabilisierung des Polarwirbels, was den Abbaueffekt über die Isolierung der Luftmassen und die vermehrte Bildung von polaren Wolken weiter verstärkt (positive Rückkoppelungen). Die hemisphärische Dissymmetrie der Aerosolverteilung (Abb. 7.8b) stützt unseren Ansatz, wonach der stabilisierte antarktische Polarwirbel durch einen Konkurrenzeffekt zu einem vermehrten meridionalen Transport über die Nordhalbkugel führt, und so zur entgegengesetzten Reaktion der arktischen und antarktischen Ozonschicht führt. Durch den vermehrten meridionalen Transport über der Nordhalbkugel gelangt nun mehr ozonreiche Luft in die Arktis, welche für eine Erhöhung der lokalen Temperatur sorgt.

Die Abbildungen 7.9c-7.14c zeigen die zusätzlichen Auswirkungen auf die Ozonchemie und die Zirkulation, welche durch die Hitzewirkung des Aerosols entstehen. Die differentielle Aerosolverteilung zeigt deutlich, dass die Hitzewirkung den vertikalen Transport über dem Äquator verstärkt. Durch diesen Prozess verlagert sich die Aerosolschicht deutlich nach oben, während feuchtere Luft aus der Troposphäre vermehrt in die Stratosphäre eindringen kann. Zum anderen ist durch die verringerten Verluste in die Troposphäre der meridionale Transport

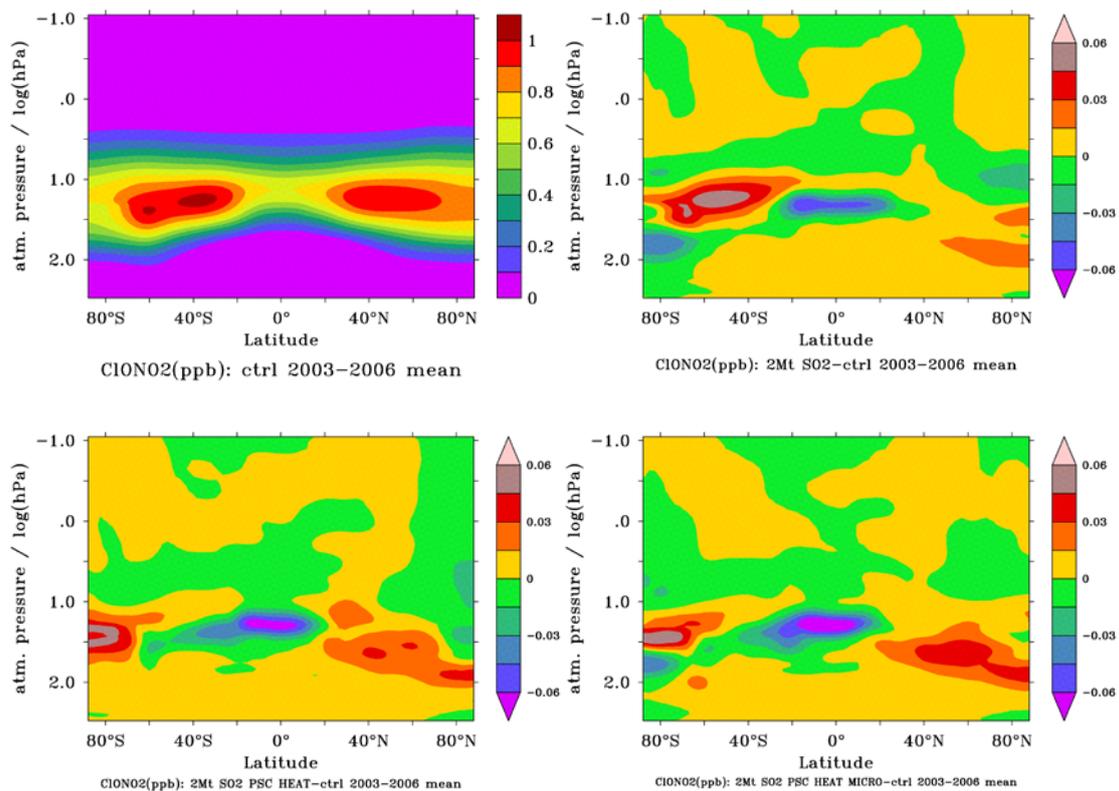


Abb. 7.13: Zonale Anomalie des Mischungsverhältnisses des  $\text{ClONO}_2$  (in ppb) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Durchschnitt der Jahre 2003-2006 im Vergleich zum Kontrolllauf. Siehe auch Abb. 7.9.

beträchtlicher, sowie durch die Abschwächung des antarktischen Polarwirbels beschleunigt (siehe oben). Über dem Äquator wird sowohl der Bereich des aufgrund des  $\text{NO}_x$ -Zyklus verringerten Ozonabbaus, als auch derjenige des aufgrund des  $\text{HO}_x$ -Zyklus beschleunigten Abbaus weiter vertieft. Sowohl das Mischungsverhältnis des  $\text{NO}_x$  als auch das des  $\text{ClONO}_2$  ist verringert, während es oberhalb der Ozonschicht zu einem ausgedehnten Bereich erhöhter  $\text{NO}_x$ -Konzentration kommt. Diese Vorgänge stehen im Zusammenhang mit der Intensivierung des vertikalen Transports. In der Aerosolphase gebundenes  $\text{NO}_x$  wird in die mittlere Stratosphäre transportiert, wo es aufgrund der höheren Temperaturen aus der Flüssigphase verdampft. Die vergleichsweise feuchte Luft, welche aus der Troposphäre angesaugt wird, treibt den  $\text{HO}_x$ -Zyklus an. Die durch den  $\text{HO}_x$ -Zyklus induzierte Veränderung des Mischungsverhältnisses ist relativ hoch, so dass diese in der Summe die Variation der Ozonsäule dominiert (vergl. Abb. 7.6a ).

Über den Polargebieten generiert die Hitzewirkung des Aerosols eine Situation, welche der des PSC-Laufs größtenteils entgegengesetzt ist. Das vermehrt meridional transportierte Aerosol bewirkt nun eine Abschwächung des antarktischen Polarwirbels, in dessen Folge die stratosphärische Ozonsäule höher wird. Abbildung 7.10c zeigt, wie in Folge des abgeschwächten Polarwirbels vermehrt Aerosol über die Antarktis einströmen kann. Die Abbildung 7.12c zeigt, dass infolge höherer Temperaturen der Abbau des Ozons durch den  $\text{Cl}_2\text{O}_2$ -Zyklus verringert wird (augenförmiges Gebilde auf etwa 30 hPa). Gleichzeitig ist der  $\text{ClO}_x$ -Zyklus durch das geoeingeearte Aerosol immer noch beschleunigt. Dies führt unterhalb des

von  $\text{Cl}_2\text{O}_2$  domierten Bereichs am unteren Rande der Ozonschicht zu einem Bereich des vermehrten Ozonabbaus.

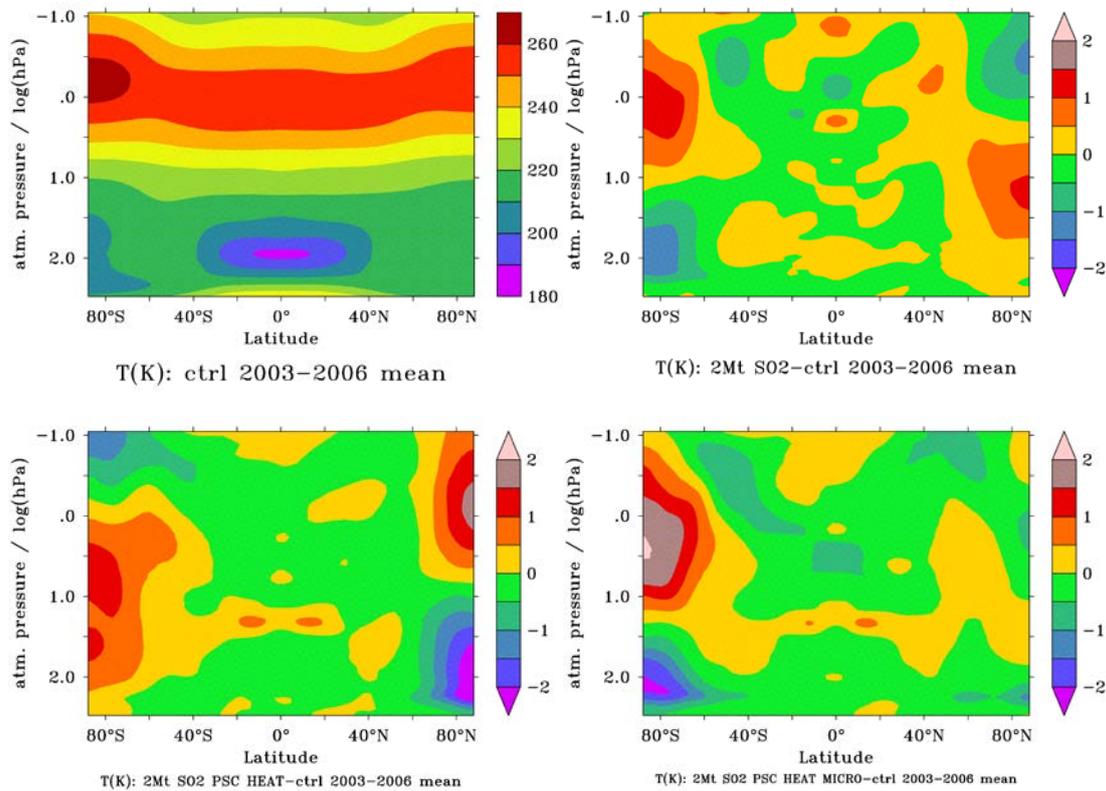


Abb. 7.14: Zonale Anomalie der Temperatur (K) als Funktion der Höhe bei 2 Mt S pro Jahr im Durchschnitt der Jahre 2003-2006 im Vergleich zum Kontrolllauf. Siehe auch Abb. 7.9.

Infolge des Konkurrenzeffektes ist der Transport von Aerosol und ozonreicher Luft hin zur Nordhemisphäre entsprechend deutlich verringert. Folglich sinkt die Temperatur über der Arktis ab, der Polarwirbel wird stabilisiert und Ozon weiter durch den  $\text{ClO}_x$ - und insbesondere den  $\text{Cl}_2\text{O}_2$ -Zyklus abgebaut.

Der Einfluss der Veränderung der mikrophysikalischen Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken auf das Ozon und die Ozonchemie der Tropen und mittleren Breiten ist gering (Abbildungen 7.9-7.14d). Über den mittleren Breiten ist die Abbaurrate des Ozons weiterhin durch die Dominanz des gehemmten  $\text{NO}_x$ -Zyklus vermindert, während im Bereich der Tropen der  $\text{HO}_x$ -Zyklus soweit beschleunigt ist, dass in diesem Bereich die Ozonsäule insgesamt etwas niedriger ist. Das Bild in den Polargebieten gleicht einer Mischung der Szenarien PSC und PSC HEAT. Der meridionale Transport ist nun gegenüber dem PSC-Lauf in beide Hemisphären erhöht. Während die Wärmewirkung der Aerosole immer noch den Transport ozonreicher Luft über die Antarktis begünstigt, wird der antarktische Polarwirbel im südhemisphärischen Winter durch vermehrten Ozonabbau im Bereich der PSC soweit stabilisiert, dass der Wärmeeffekt mehr als umgekehrt wird (siehe auch oben). Entsprechend sind der  $\text{ClO}_x$ - und der  $\text{Cl}_2\text{O}_2$ -Zyklus insgesamt beschleunigt, während in der unteren antarktischen Stratosphäre die Temperatur insgesamt im Jahresdurchschnitt verringert, und in der mittleren und oberen Stratosphäre erhöht ist. Über der Arktis ist das Bild ebenfalls

gemischt. Einerseits erhöht die Wärmewirkung des Aerosols den meridionalen Transport. Andererseits wird auch auf der Nordhalbkugel der Ozonabbau durch die veränderten Eigenschaften der PSC über den  $\text{ClO}_x$ - und den  $\text{Cl}_2\text{O}_2$ -Zyklus erhöht, und durch den stabilisierten Polarwirbel in positiver Rückkoppelung noch einmal verstärkt. Über der Arktis dominiert jedoch tendenziell der Effekt des verstärkten meridionalen Transports ozonreicher Luft, so dass die Ozonschicht insgesamt im Jahresdurchschnitt nahezu unverändert bleibt

## 8 Auswirkungen des SRMs auf die Dynamik der Stratosphäre

Stratosphärische Sulfataerosole sind keine passiven Spurenstoffe sondern treten mit kurz- und langwelliger Strahlung in Wechselwirkung. Die stratosphärische Sulfatschicht reduziert die Erwärmung der Erdoberfläche durch die Reflektion kurzwelliger Strahlung. Gleichzeitig wird Strahlung im nahen Infrarot und von längeren Wellenlängen absorbiert, was eine Erwärmung der Stratosphäre zur Folge hat (Lacis et al., 1996). In diesem Forschungsvorhaben wurde eine vertikal hoch auflösendes Modell verwendet, da wesentliche dynamische Vorgänge in der Stratosphäre nur so erfasst werden können. In vorhergehenden Studien wurden vorwiegend deutlich geringere vertikale Auflösungen verwendet (e.g. Heckendorn et al., 2009; Tilmes et al., 2009; Niemeier et al., 2011), wodurch grundsätzliche dynamische Vorgänge der tropischen Stratosphäre, z.B. die quasi-zweijährigen Oszillation (quasi-biennial Oszillation, QBO), des zonalen Windes nicht simuliert werden konnten. Im Folgenden wird dargestellt welchen Einfluss die Sulfatemissionen auf die Dynamik und damit rückkoppelnd auch auf den Transport der Spurenstoffe haben. Da das verwendete Modell keine Gasphasenchemie enthält, der Rechenaufwand wäre zu hoch gewesen, wurden Rückkopplungen oder Verstärkungen dynamischer Einflüsse wie die winterliche Erwärmung durch absorbierendes Ozon oder Auswirkungen der polaren Stratosphärenwolken nicht simuliert.

Die dazu durchgeführte Sensitivitätsstudie umfasst drei Simulationen über jeweils 30 Jahre:

- Kontrolllauf: ECHAM5-HAM Simulation mit Sulfathintergrundkonzentrationen aus natürlichen Quellen als einzige Emissionen,
- MT4: Schwefelemissionen von 4 Mt S/Jahr, kontinuierlich in eine Gitterbox in 60 hPa Höhe (ca. 19 km) am Äquator emittiert und
- MT8: wie MT4 jedoch mit Emissionen von 8 Mt S/Jahr.

Abbildung 8.1a zeigt in der tropischen Stratosphäre eine gut ausgebildete QBO (siehe auch Kapitel 4). Stratosphärische Schwefelemissionen führen zu einer Veränderung der Schwingung der QBO. Mit zunehmender Emissionsstärke verlangsamt sich die vertikale Propagation der QBO-Jets, bis diese schließlich stagnieren (Abbildung 8.1b) bis hin zu einer gleichbleibenden Westphase bei Emissionen von 8 Mt S/Jahr. Diese Ergebnisse sind vergleichbar zu Aquila et al. (2014). Im Folgenden werden die Auswirkungen der geänderten QBO-Phase erläutert. Die Änderungen der Dynamik in den Tropen (Kap. 8.1) und mittleren bis hohen Breiten (Kap 8.2) werden getrennt betrachtet. Weiter werden dynamische Änderungen in den mittleren und hohen Breiten als mögliche Folge dieser abnehmenden Frequenz betrachtet. In Kapitel 8.3 werden Auswirkungen der geänderten Dynamik auf den Transport der Sulfataerosole beschrieben.

### 8.1 Auswirkung des SRMs auf die dynamischen Prozesse in den Tropen

Durch Wechselwirkung der Sulfatschicht mit Strahlung im nahen Infrarot und mit längeren Wellenlängen bewirken zunehmende Schwefelkonzentrationen eine zunehmende Erwärmung der unteren Stratosphäre (Abbildung 8.2). Diese lokale Temperaturerhöhung führt zu einem zusätzlichen Auftrieb und damit zu einer leichten Verlängerung der Lebenszeit des Sulfates.

Vergleiche zweier Simulationen mit und ohne Erwärmung durch langwellige Strahlung zeigen eine Zunahme der Sulfatkonzentration von 20% im oberen Teil der Sulfatschicht. Die

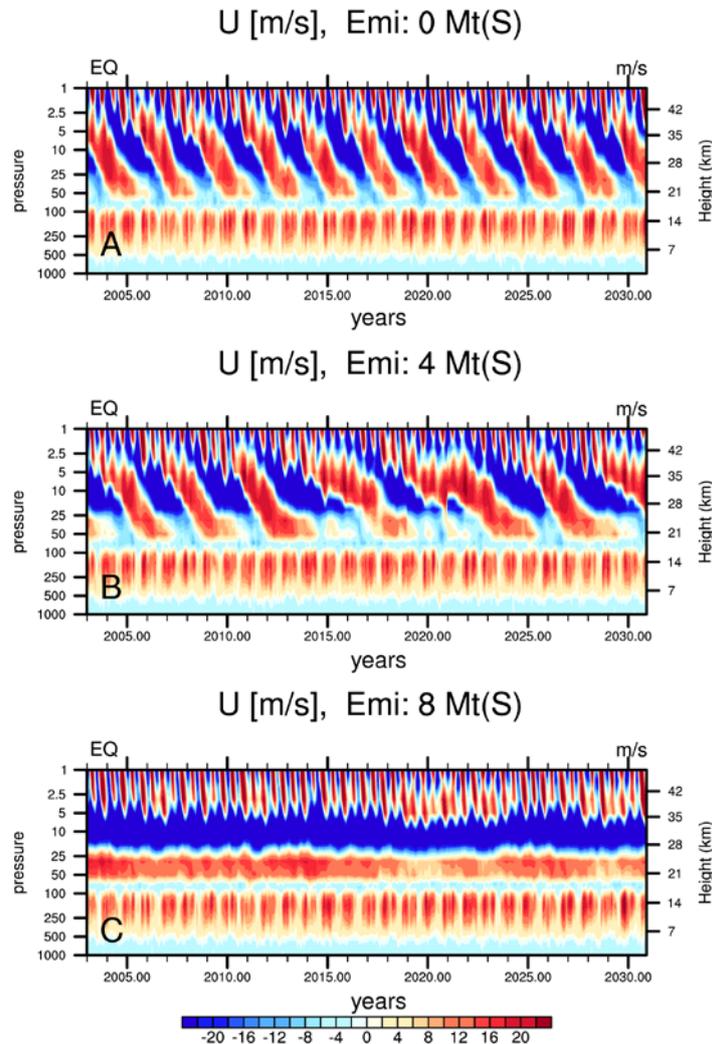


Abb. 8.1: Quasi biennale Oszillation bei verschiedenen Emissionsstärken: Zonal gemittelter zonalwind am Äquator ohne SRM (oben), mit Emissionen von 4 Mt S/Jahr (Mitte) und 8 Mt S/Jahr (unten). Mit zunehmender Emissionsstärke verlängert sich die Westphase in der Höhe von 50 hPa, bis hin zu einer konstanten Westphase. Blau abgebildet sind östliche Winde und rot westliche Winde.

aufwärtsgerichtete residuale Vertikalgeschwindigkeit ist in der äquatornahen Stratosphäre um 5% bis 10% erhöht, wie Niemeier et al. (2011) mit einer Modellversion ermittelt haben, welche die QBO nicht aufgelöst hat. Gleichzeitig verstärkt sich die meridional Zirkulation als Teil der Brewer Dobson Zirkulation durch diesen verstärkten Auftrieb.

Diese aufwärtsgerichtete Vertikalbewegung bewirkt eine Verlangsamung der QBO Abwärtsbewegung. Dadurch verlängern sich die Westwindphasen in der unteren Stratosphäre (Abbildung 8.1b und 8.1c). Bei 4 Mt S/Jahr verlängert sich die Periode der Schwingung auf 32 Monate bis hin zu 60 Monaten. Bei Emissionen von 8 Mt S/Jahr bildet sich zwischen 50 hPa und

25 hPa Höhe ein permanenter Westwind und darüberliegend eine Ostwindregion aus. Die Frequenz

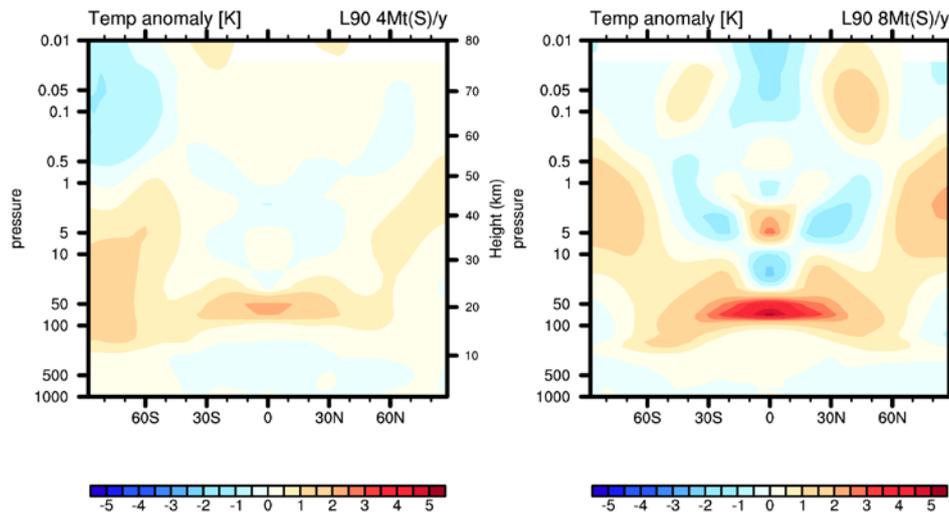


Abb. 8.2: Zonales Jahresmittel der Temperaturanomalie [K] für MT4 (links) und MT8 (rechts) als Differenz zum Kontrolllauf.

der Schwingung und die vertikale Erstreckung des Westwindbereiches sind abhängig vom Modell und der gewählten Emissionshöhe der Aerosole. Z.B. liegt in Aquila et al (2014) die Westwindregion zwischen 50 hPa und 20 hPa, wenn die Aerosole zwischen 16 km und 22 km Höhe emittiert werden und reicht bis 10 hPa, wenn sie zwischen 22 km und 25 km Höhe emittiert werden. Die vertikale Erstreckung des Westwindbereiches hat Auswirkungen auf die Strömungsverhältnisse der Stratosphäre (siehe Abschnitt 8.3).

Ein kurze Beschreibung der physikalischen Vorgänge, die zur Abschwächung der QBO führen, gibt Aquila et al. (2014). Die tropische, stratosphärische Dynamik wird bestimmt durch eine allgemeine Aufwärtsbewegung, sichtbar besonders beim Wasserdampf als sogenannter `tape recorder` Effekt (Mote et al, 1996). Die QBO ist aber eine wellengetriebene Abwärtsbewegung. Durch die verstärkte Vertikalbewegung in der unteren Stratosphäre, ausgelöst durch die heizenden Sulfataerosole, wird der "Widerstand" gegen die abwärts gerichtete Ausbreitung des Ostwindes so stark, dass die Abschwächung des Westwindes auf ca. 50 hPa darunter nur langsam vonstatten geht. Dieses verlängert die Periode der QBO und der Westwind bleibt länger bestehen. In MT8 stellt sich hingegen ein Gleichgewicht zwischen wellengetriebener Abwärtsbewegung und advektiver Aufwärtsbewegung ein, wodurch die QBO in einer Phase verharrt. Anschaulich kann man sich die allgemeine Aufwärtsbewegung der Stratosphäre als eine hochfahrende Rolltreppe vorstellen, auf der eine abwärts rennende Person die stratosphärischen Wellen darstellt, welche die QBO antreiben. Beschleunigt sich die Aufwärtsbewegung der Rolltreppe, durch verstärkte Vertikalgeschwindigkeit als Folge der heizenden Sulfataerosole, kommt die mit gleicher Geschwindigkeit abwärtslaufende Person nicht mehr dagegen an.

## 8.2 Dynamische Prozesse in den mittleren und hohen Breiten

Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, dass die stratosphärische Sulfatschicht die Dynamik in den Tropen beeinflusst und zu starken Veränderungen der QBO führt. Nun stellt sich die Frage, wieweit dieses auch Auswirkungen auf die dynamischen Vorgänge außerhalb

der Tropen hat. Beobachtungen nach Vulkaneruptionen zeigen eine Verstärkung des winterlichen Polarwirbels auf der Nordhalbkugel (Graf et al., 2007) durch die wärmenden Sulfataerosole. Um die zusätzlichen Auswirkungen der veränderten QBO auf dynamische Prozesse wie Wind- und Temperaturfelder zu finden, wird versucht, den Einfluss der QBO von dem der Erwärmung der Stratosphäre durch die Sulfatschicht zu unterscheiden, denn beide beeinflussen sich gegenseitig. Anders als in MT8, treten in MT4 in 50 hPa Höhe sowohl eine Ost- als auch eine Westphase auf. Nimmt man an, dass die aerosolbedingte Erwärmung in beiden Phasen gleich ist, lassen sich durch Vergleich der beiden Phasen Rückschlüsse auf deren unterschiedliche dynamische Effekte ziehen, um so die Unterscheidung zwischen rein dynamischen Auswirkungen und denen der erwärmten Stratosphäre zu ermöglichen.

Calvo et al. (2007) beschreibt ausführlich das Verhalten der QBO in MAECHAM5 und liefert damit eine Beschreibung des Zustandes der Atmosphäre in den verschiedenen Phasen der QBO ohne Störung durch eine heizende stratosphärische Sulfatschicht. Die Studie zeigt signifikante Unterschiede zwischen der QBO Ost- und Westphase im Mittel der Monate Dezember bis Januar in den nördlichen höheren Breiten und damit einen Holton-Tan Effekt. In unseren Simulationen MT4 und MT8 nimmt die Häufigkeit der QBO-Westphase in der unteren Stratosphäre zu. Daher ist es naheliegend, nach einem Holton-Tan Effekt (siehe Abschnitt 5.3) in den Ergebnissen zu suchen. Zunächst muss dazu geklärt werden, wie weit sich ein Holton-Tan Effekt in ECHAM5-HAM ermitteln lässt. Calvo et al (2007) definieren die Phasen im zonalen Mittel am Äquator als West, wenn in 30 hPa Höhe der mittlere zonale Wind ( $u$ ) höher als 10 m/s ist, bzw als Ost, wenn  $u < -10$  m/s. Dieses Kriterium wird leicht abgewandelt auf den Kontrolllauf angewandt, allerdings wird für jeden Monat einzeln das Kriterium angewandt und die West- bzw Ostphasen erfasst. Die Auswahlhöhe wurde auf 20 hPa gelegt, da bei 30 hPa in unseren Simulationen die Phase nicht eindeutig ist (siehe Abbildung 8.1b).

In unserem Kontrolllauf ergibt sich eine Zunahme des mittleren zonalen Windes am Nordpol in den Monaten Dezember und Januar in der QBO-Westphase (Abb. 8.3). Signifikant ist das Ergebnis im Dezember in der Höhe um 1 hPa wenn West- gegen Ostphasen verglichen werden. Alle schraffierten Regionen sind nicht signifikant. Getestet wurde mit einem t-Test auf 95% Standardabweichung. Diese Region verstärkten Westwindes wandert im Januar weiter nach unten, bleibt jedoch tendenziell in zu großer Höhe. Damit wird im Kontrolllauf ein Holton-Tan Effekt simuliert, wobei die Betrachtung durch die kleine Zahl von jeweils ca. 10 Mitgliedern der jeweiligen Phase eingeschränkt ist.

Die wesentliche Veränderung im äquatorialen Zonalwind ist eine Verlängerung der Westwindphasen zwischen 25 hPa und 50 hPa in MT4, quasi die Ausbildung von Westwindnasen, die in einen bleibenden Westwindjet in MT8 übergehen. Oberhalb von 25 hPa dominieren Ostwinde. Das Kriterium zur Trennung der Ost- und Westphase nach Calvo et al. (2007) erfasst die Änderung der QBO durch die stratosphärische Sulfatschicht nur unzureichend. Zur Unterscheidung der Phasen wird ein Kriterium gewählt, das besonders die Nasen der Westwindphase in 50 hPa erfasst.:

- Phase 1: Westwind in 50 hPa (Zonalwind ( $u$ )  $> 5$  m/s) und Ostwind in 15 hPa ( $u < 5$  m/s).
- Phase 2: Ostwind in 50 hPa ( $u < 0$  m/s) und Westwind in 15 hPa ( $u > 5$  m/s).

Mit diesem Kriterium werden die Perioden der nicht ganz abwärts wandernden QBO zwischen 2015 und 2022 aus der Analyse herausgenommen (Abb. 8.1b).

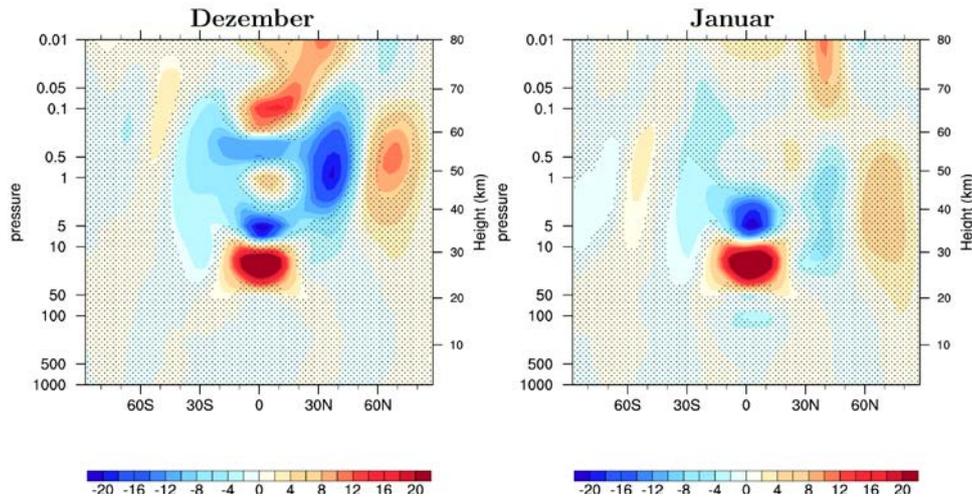


Abb. 8.3: Zonales Mittel des Zonalwindes [m/s] des Kontrolllaufes als Differenz zwischen Westwind- und Ostwindphasen der QBO im Dezember (links) und Januar (rechts). Schattiert gekennzeichnet sind Bereiche welche nicht signifikant sind. Getestet wurde mit einem t-Test auf 95% Standardabweichung.

Vergleichen wir jetzt Phase 1 gegen Phase 2, so ergibt sich im Kontrolllauf folgendes Bild: Abnehmende Stärke des zonal gemittelten Westwindes in der oberen Stratosphäre nördlich von  $50^{\circ}$  N im frühen Winter (Abbildung 8.4, links). Ein ähnliches Ergebnis ergibt die Simulation MT4, allerdings ist das Signal schwächer und weniger konsistent ausgebildet und zwischen 10 und 100 hPa kommt es zu einer leichten, nicht signifikanten Verstärkung des Westwindes. Für unsere Analyse bedeutet dies, dass in diesen Simulationen der Bereich der tropischen Westwindphase zwischen 50 und 20 hPa anscheinend weniger entscheidend für die dynamischen Auswirkungen der geänderten QBO in den höheren Breiten ist. Vielmehr ist der darüber liegende Bereich häufigeren (MT4) bzw. permanenten (MT8) Ostwindes (Abb. 8.1) wesentlich. Für genauere Aussagen sind jedoch weitere Analysen notwendig. Damit führt die geänderte QBO in dieser Studie zu einer Abschwächung des winterlichen arktischen Polarwirbels in Phase 1. Anstey und Shepherd (2014) betonen in ihrem Review, dass der enge Zusammenhang zwischen QBO und Polarwirbel im Detail weiterhin nicht ausreichend verstanden wird. Besonders der Höhenbereich der QBO, der den größten Einfluss auf den Polarwirbel hat, ist noch unsicher. Daher ist es nicht völlig überraschend, dass die hier gezeigten Ergebnisse bezüglich des vertikalen Einflussbereiches der Holton-Tan Theorie widersprechen.

Das hier gezeigte Ergebnis ist dabei vom Modell, der vertikalen Erstreckung der erwärmten Schicht in der Stratosphäre und der Emissionshöhe abhängig. Eine höhere Emissionshöhe hat eine Erwärmung in größerer Höhe zur Folge, was den Bereich des Westwindes erweitern wird. In Aquila et al. (2014) erstreckt sich der Westwindbereich von 50 hPa bis auf 10 hPa Höhe, die Emissionen liegen in 22 km bis 25 km Höhe. In dieser Studie liegt die Emissionshöhe in ca. 19 km und der Westwindbereich erstreckt sich nur bis auf eine Höhe von 20 hPa. Auch die in Kapitel 7 beschriebenen Ergebnisse enthalten eine QBO (ohne Abbildung). Mit Emissionen in 25 km Höhe (30 hPa) ist eine Änderung der QBO bereits bei Emissionen von 2 Mt S pro Jahr zu sehen, bei Emissionen von 4 Mt S bildet sich eine konstante Westphase zwischen 50 hPa und 30

hPa aus. In den Ergebnissen der Simulation mit Emissionen von 8 Mt S pro Jahr steigt die vertikale Erstreckung des Westwindbereiches mit der Zeit an, von anfänglich 50 hPa bis 15 hPa zu 50 hPa

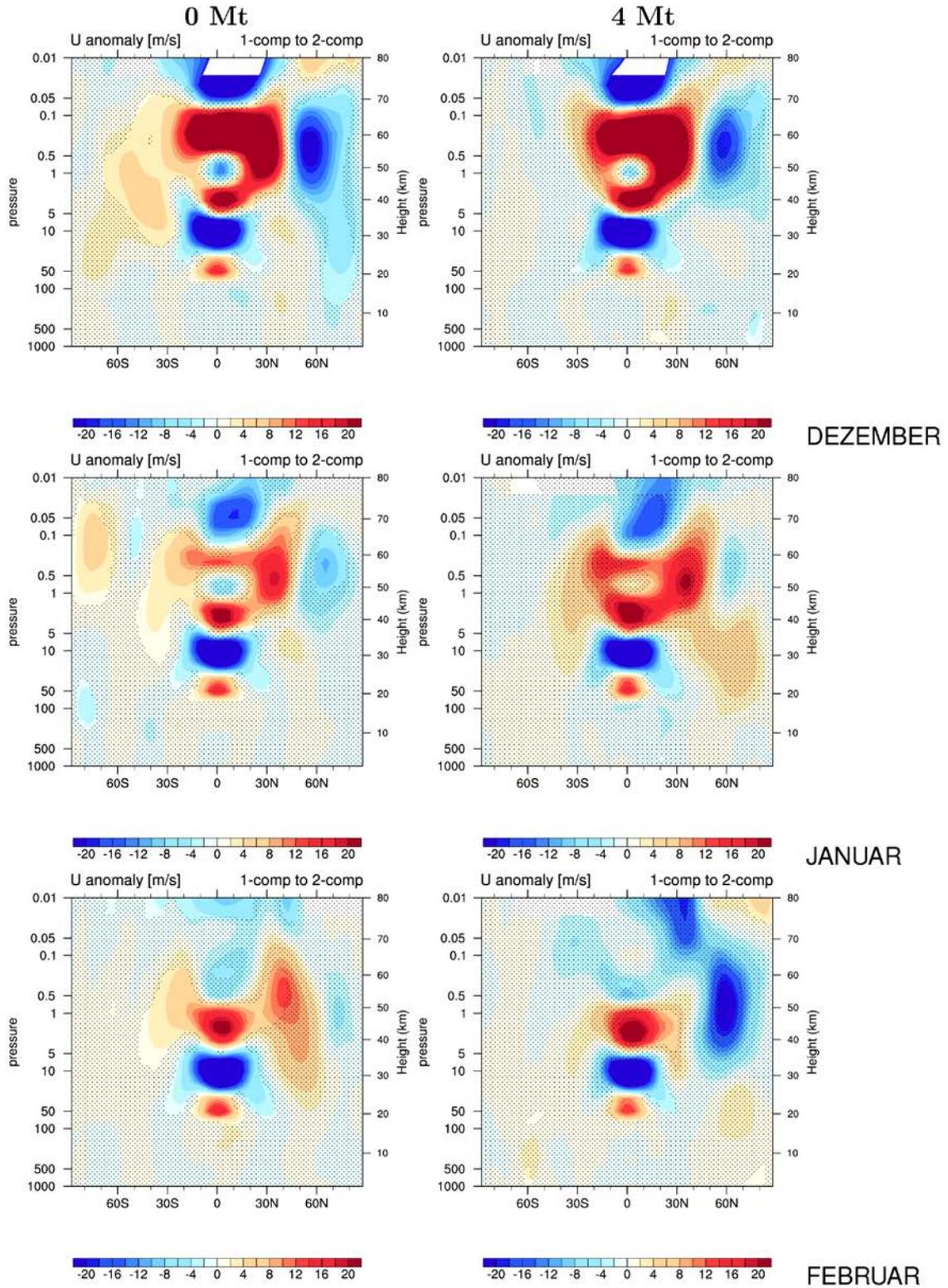


Abb. 8.4: Differenz des zonal gemittelten zonalen Windes zwischen Phase 1 und Phase 2 des Kontrolllaufes (links) und MT4 (rechts) der Monate Dezember (oben) Januar (Mitte) und Februar (unten).

bis 5 hPa nach 8 Modelljahren. Da diese Zeitreihe für eine Untersuchung der Auswirkungen der QBO zu kurz ist, wurden die Ergebnisse in diesem Kapitel nicht herangezogen.

Ziel dieser Betrachtungsweise mit einer Trennung der Ost- und Westphasen in MT4 war die Unterscheidung zwischen rein dynamischen Auswirkungen und der Auswirkung der erwärmten Sulfatschicht. Von letzterer ist die verstärkende Auswirkung auf die Polarwirbel bekannt. In der Summe kommt es so zu einer leichten Verstärkung des Polarwirbels, welche aber durch den Einfluss der QBO abgeschwächt wird.

### 8.3 Auswirkungen auf den Spurenstofftransport

In den verschiedenen Phasen der QBO unterscheiden sich die Strömungsverhältnisse in den Tropen (Treppe und Hitchman, 1992). Abbildung 1 in Punge et al (2009) zeigt die Unterschiede schematisch: Polwärts gerichtete Strömung zwischen 15 hPa und 10 hPa in der Ostphase und äquatorwärts gerichtete Strömung in der Westphase. Die Vertikalbewegung ist stärker in der Westphase, wodurch Spurenstoffe dort stärker vertikal verteilt werden.

Abbildung 8.5 und 8.6 zeigen jeweils die Sulfatkonzentration in den zwei QBO Phasen. In Abbildung 8.5 wurden sie als zonales Mittel gegen die Höhe aufgetragen, oben, Phase 1 (links) und Phase 2 (rechts), sowie darunter als Differenzen der Konzentration: als absolute Differenz (Phase 1 - Phase 2) (links) und relative Differenz (Phase 1 - Phase 2) / Phase 2 in % (rechts). Die Unterschiede der Verteilung zwischen den Phasen werden in den Differenzen wesentlich deutlicher. Am Äquator nimmt die Konzentration in der zentralen Sulfatschicht in Phase 1 gegenüber Phase 2 um ca 10% ab, am oberen und unteren Rand nimmt die Konzentration durch die stärkere vertikale Ausbreitung in der Westphase zu. Hier überlagert sich der Einfluss der QBO mit der verstärkten Vertikalbewegung durch die Erwärmung. Der verstärkte vertikale Transport am Unterrand der Sulfatschicht in der Westphase verstärkt auch den Abwärtstransport des Sulfates Richtung Troposphäre am Äquator. Dieses dürfte zu einer verstärkten Sedimentation führen.

Die Zunahme der Konzentration beträgt am oberen Rand der Sulfatschicht bis zu 100%. Von dort werden die Sulfate in Phase 1 verstärkt weiter aufwärts und polwärts transportiert. Diese Änderung der Dynamik führt zu Zunahmen der Konzentration zwischen 10 hPa und 3 hPa um mehr als 50%. Oberhalb von 3 hPa verdampfen die Aerosole und werden in die Gasphase überführt.

Die in Abbildung 8.5 (unten) überlagerten Isolinien sind Stromlinien der Stromfunktion. Sie stellen die Anomalie zwischen den Phasen dar und beschreiben die sekundäre Zirkulation, da die Differenzenbildung die Hauptströmung (Brewer Dobson Zirkulation) herausfiltert. Diese Sekundärzirkulation bildet sich um die zonalen Jets der QBO. Der Spurenstofftransport folgt den Stromlinien, bei positiven im Uhrzeigersinn und bei negativen dem Uhrzeigersinn entgegengesetzt. Die Stromlinien spiegeln die bei Punge et al (2009) beschriebenen Transportrichtungen wieder.

In der unteren Stratosphäre (100 hPa bis 20 hPa) zeigt sich eine Verschiebung des hemisphärischen Transportes zwischen den Phasen (Abb. 8.5, links unten): In Phase 1 stärkerer

Transport zum Südpol und in Phase 2 stärkerer Transport zum Nordpol mit jeweils um bis zu 20% erhöhten Konzentrationen. Erkennbar sind diese Unterschiede auch im Hovmöllerdiagramm in

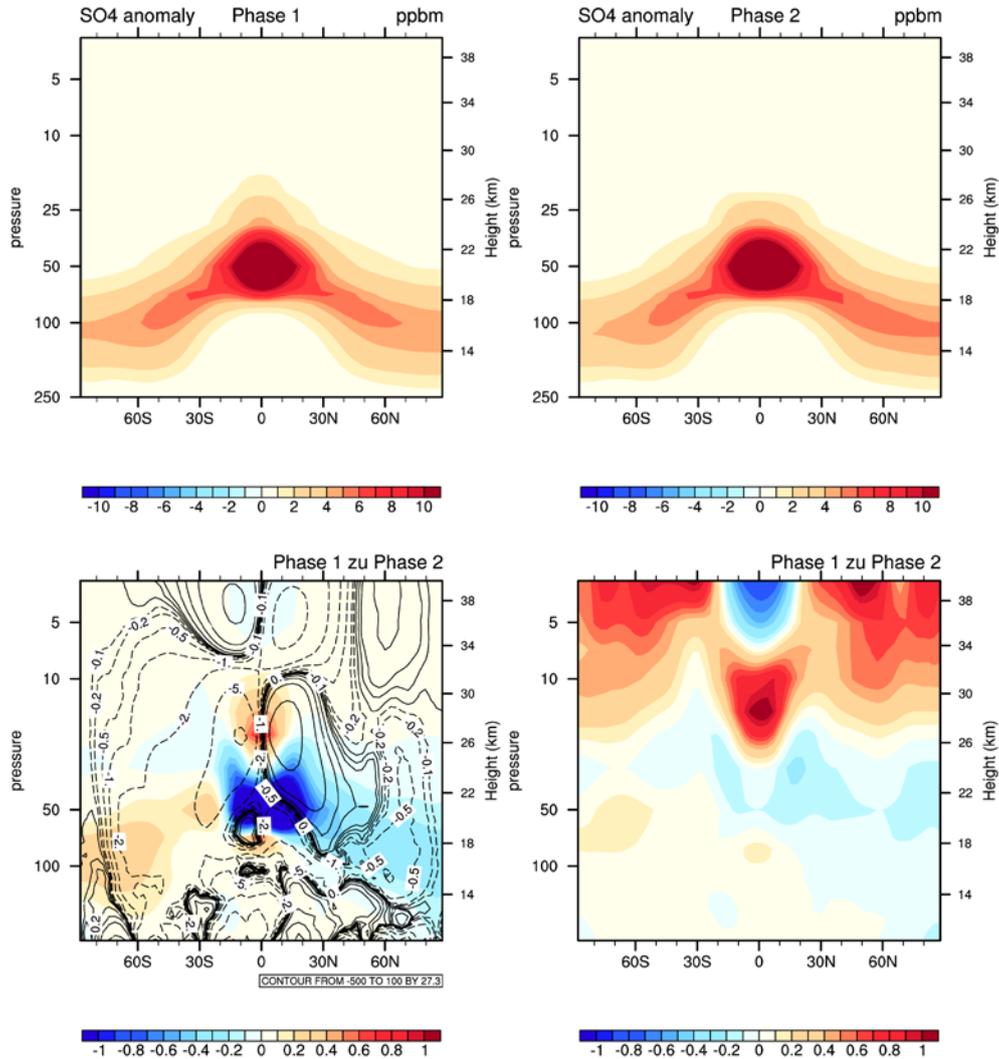


Abb. 8.5: 4Mt: Vertikalverteilung des zonalen Mittels der Konzentration (oben) in Phase 1 (links) und Phase 2 (rechts) und unten deren Differenzen als absolute Differenz [ppb] (links) und relative Differenz [%] (rechts). Zusätzlich ist die Anomalie der Stromlinien zwischen Phase 1 und Phase 2 (unten, links) abgebildet.

Abbildung 8.6 (oben). Hier wurden in MT4 die zonalen Mittel des monatlichen Sulfatburdens, die vertikal integrierte Konzentration pro Quadratmeter, mit dem globalen Jahresmittel von MT4 normiert und für ein Jahr aufgetragen. Im Vergleich zwischen Phase 1 und 2 ist die Konzentration in Phase 2 am Nordpol von April bis Juni um 30% höher als im globalen Mittel, in Phase 1 nur von April bis Mai um 25%. Auch am Äquator ist die Konzentration in Phase 2 etwas höher. Punge et al (2009) zeigen eine Abhängigkeit des horizontalen Transportes von der QBO Phase mit stärkerem polgerichteten Transport in der Westphase auf der Sommerhalbkugel, jedoch keine phasenabhängige Verschiebung des Transportes hin zu einer Hemisphäre. Die Stromlinien geben ebenfalls keine eindeutige Erklärung. Sie zeigen allerdings

eine weitere Zirkulation bei 5 hPa in den höheren nördlichen Breiten. Gleichzeitig ist die Strömungsrichtung am Nordpol aufwärts (bei ~50 hPa), am Südpol aber abwärts gerichtet.

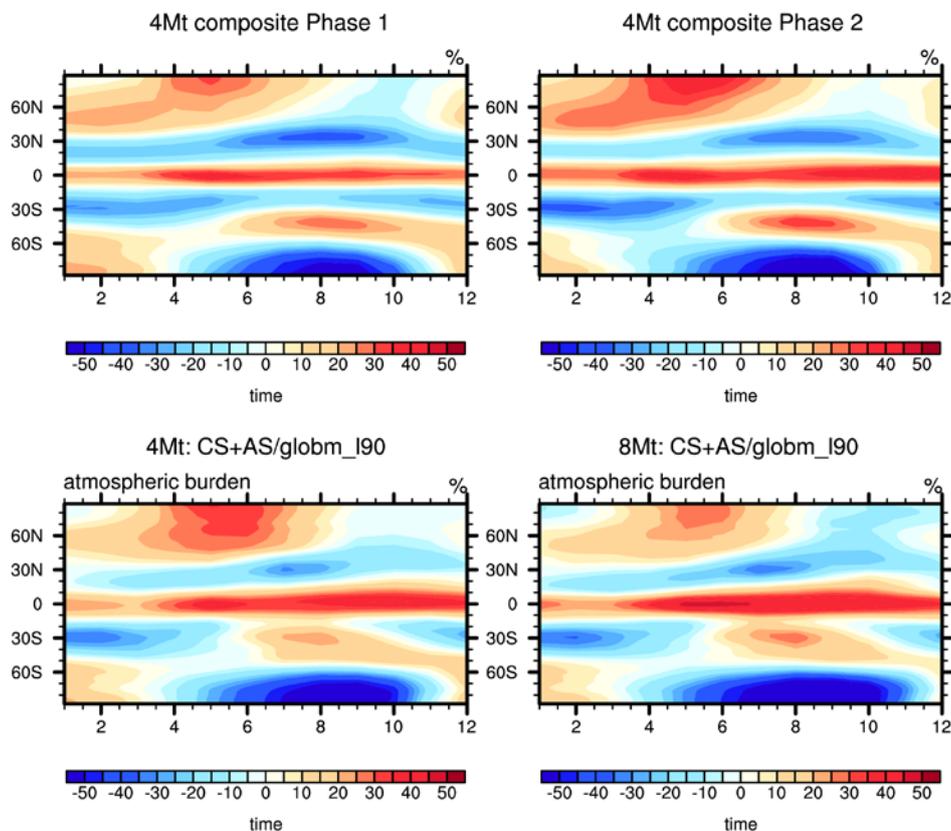


Abb. 8.6: Hovmöllerdiagramm des normierten Sulfatburdens [%].  
 Oben: Composites der Phase 1 (links) und Phase 2 (rechts) der Simulation 4Mt.  
 Unten: Sulfatburden ohne Composites für Mt4 (links) und Mt8 (rechts). Die zonalen Mittel des monatlichen Sulfatburdens, vertikal integrierte Konzentration, wurden mit dem globalen Jahresmittel gewichtet und für ein Jahr aufgetragen. Die Abbildung zeigt damit die Abweichung vom globalen Mittel.

In Abbildung 8.6 unten sind die normierten Konzentrationsverteilungen der Simulationen MT4 und MT8 ohne Aufteilung in Phasen dargestellt. Beide Verteilungen wurden mit dem jeweiligen globalen Mittel normiert. In MT8 ist Phase 1, Westphase in 50 hPa, der gleich bleibende Zustand. In Phase 1 verringert sich der Transport zum Nordpol. Entsprechend verringert sich der Transport in MT8 weiter.

Die hier beschriebene interhemisphärische Transportverschiebung steht nicht im Zusammenhang mit den in Kapitel 7 beschriebenen Prozessen. In Kapitel 7 werden die verschiedenen hemisphärischen Transporte vorwiegend durch Temperaturänderungen als Folge der Absorption von Strahlung durch die Spurenstoffe hervorgerufen. Hier wird der Transport zwischen zwei Phasen der QBO einer Simulation verglichen, um den Einfluss der QBO von dem der Erwärmung zu trennen. Ein Zusammenhang lässt sich jedoch nicht ausschließen. In den in Kapitel 7 beschriebenen Ergebnissen wurde ebenfalls eine QBO simuliert. Die Änderungen des Transportes durch die Erwärmung der Stratosphäre weisen Übereinstimmungen mit den hier beschriebenen Änderungen auf. In Abbildung 7.2 ist der

Einfluss der QBO in der Simulation mit Emissionen von 8 Mt S/Jahr im mit der Zeit abnehmenden Sulfattransport zu den Polen zu vermuten. In den 10 Simulationsjahren nimmt die vertikale Erstreckung des Westwindbereiches stetig zu. Wie Baldwin et al (2001) ausführen, verstärkt sich in der QBO-Westphase die Barriere des horizontalen Transportes. Da in der Simulation die Erstreckung der Westphase stetig zunimmt, könnte der abnehmende Sulfattransport zu den Polen damit im Zusammenhang stehen. Für genauere Aussagen müssten die Strömungsprozesse genauer untersucht werden.

Die in diesem Kapitel beschriebenen Ergebnisse zeigen den Einfluß der QBO auf den Transport des Sulfataerosols von den Tropen in Richtung Pol. Die für ECHAM5-HAM gewählte Emissionshöhe des Schwefels von 60 hPa führt zur Verlängerung der QBO Westphasen zwischen 50 hPa und 30 hPa, bzw. zu einer dauerhaften Westphase. Diese Änderung der QBO Phasen führt zu einem verminderten Transport des Sulfates in die Nordhemisphäre, bei gleichzeitig verstärktem Transport in die Südhemisphäre. Die höhere Emissionshöhe in EMAC (30 hPa) ergibt eine größere vertikale Erstreckung des Westwindbereiches, welcher dann den Transport dominiert. Damit scheint die Änderung der QBO von der Emissionshöhe anhängig zu sein. Für genauere Aussagen sind aber weitere Untersuchungen notwendig. Diese müssen konsistent mit einem Modell durchgeführt werden, um die Modellabhängigkeit der Aussage ausschließen zu können.

Rückschlüsse auf andere Spurenstoffe sind nur schwer möglich, da diese eine andere Verteilung mit der Höhe aufweisen. Aquila et al. (2014) zeigt eine Anomalie der Ozonverteilung, bei konstanter Westphase zwischen 50 hPa und 10 hPa, die der Anomalie der Sulfatkonzentration zwischen 20 hPa und 3 hPa in dieser Studie entspricht (Abbildung 8.5, unten). Eine mögliche Rückkopplung durch Strahlungswechselwirkung mit Ozon kann nach den Ergebnissen in Kapitel 7 nicht ausgeschlossen werden. Da die Ergebnisse in diesem Kapitel ohne Gasphasenchemie berechnet wurden, müssen solche Auswirkungen hier offen gelassen werden.

## 9 Schlussfolgerung

Ziel dieser Untersuchung ist die Quantifizierung der Auswirkungen des stratosphärischen Geoengineerings auf die globale Ozonschicht mit Hilfe von globalen Zirkulationsmodellen mit gekoppelter atmosphärischer Chemie und Aerosolprozessen. Die Modellresultate dieser Studie zeigen innerhalb des getesteten Injektionsratenintervalls von 2-8 Mt S pro Jahr einen relativ begrenzten Einfluss auf das stratosphärische Ozon. Die Resultate geben ein geographisch uneinheitliches Bild. Während über dem Äquator ein relativ geringfügiger Ozonabbau im unteren einstelligen Prozentbereich aufgrund des beschleunigten HO<sub>x</sub>-Zyklus auftritt, erfolgt in den mittleren Breiten gar ein geringfügiger Anstieg aufgrund des gehemmten NO<sub>x</sub>-Zyklus. Über den Polargebieten ergibt sich durch die Interaktion von chemischen und dynamischen Prozessen ein ungleich komplizierteres Bild, welches von einem leichten Anstieg bis zu einer deutlichen Abnahme der Ozonsäule um bis zu 10% reicht. Insgesamt sind die Auswirkungen auf das polare Ozon von einer starken Tendenz der Asymmetrie der Nordhalbkugel gegenüber der Südhalbkugel geprägt.

Von Vulkanausbrüchen ist bekannt, dass es in deren Folge zu einer Abnahme des globalen sowie insbesondere des polaren Ozons kommt. Dieser Effekt konnte in dieser Studie zum stratosphärischen Geoengineering nur bedingt reproduziert werden. Dies könnte dadurch bedingt sein, dass die chemischen Voraussetzungen insofern verschieden sind, dass Geoengineering voraussichtlich nicht mit der Einbringung einer zusätzlichen Menge von Halogenen verbunden wäre. Zudem konnte in dieser Studie aufgezeigt werden, dass in Hinsicht auf das polare Ozon dem Ineinandergreifen sämtlicher beteiligter Prozesse in der Summe eine wesentliche Bedeutung zukommt. Im Bereich des außerpolearen Ozons werden chemische Prozesse tendenziell durch dynamische Effekte in geringem Maße verstärkt, und umgekehrt. In den Polargebieten dagegen werden vermehrt gegensätzliche Effekte simuliert. Bei Ausklammerung der Erwärmung der Stratosphäre durch das Aerosol und der Auswirkungen des Aerosols auf die mikrophysikalischen Eigenschaften der polaren stratosphärischen Wolken (PSC), führen chemisch-dynamische Wechselwirkungen in Abhängigkeit von der Injektionsrate zu einer hemisphärisch entgegengesetzten Wirkung auf das polare Ozon. Ein analoges Resultat der chemisch-dynamisch bedingten hemisphärischen Asymmetrie wird erzielt, wenn die Strahlungseigenschaften des Aerosols berücksichtigt werden. Annahmen zur Veränderung der mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC unter dem Einfluss von Geoengineering führen ebenfalls zu einem hemisphärisch klar kontrastierten Resultat. Unsere Analysen haben gezeigt, dass insbesondere der Beeinträchtigung des meridionalen Transports von ozonreicher Luft und Aerosolpartikeln, und deren Auswirkungen auf die Stabilität der Polarwirbel, und damit der Bildung von PSC, eine gewichtige Rolle zukommen könnte. Hier muss jedoch angefügt werden, dass angesichts der Komplexität des Zusammenspiels der die Ozonschicht beeinflussenden Faktoren genauere Aussagen zu den hier angeführten Erklärungsmustern noch weitergehender Studien bedürfen.

Ein weiteres wesentliches Ergebnis dieser Untersuchung ist die Auswirkung der Sulfatschicht auf die Dynamik der quasi-biennalen Oszillation (QBO). Mit ansteigender Schwefelinjektion wird die QBO in der tropischen Stratosphäre zunehmend beeinflusst. Zunehmende Schwefelkonzentrationen bewirken eine zunehmende Erwärmung der unteren Stratosphäre was, verkürzt gesagt, zu einem zusätzlichen Auftrieb führt. Diese aufwärtsgerichtete

Vertikalebewegung bewirkt eine Abschwächung der QBO Abwärtsbewegung. Dadurch verlängern sich die Westwindphasen in der unteren Stratosphäre. Bei 4 Mt S/Jahr verlängert sich die Periode der Schwingung. Bei Emissionen von 8 Mt S/Jahr bildet sich zwischen 50 hPa und 25 hPa Höhe ein permanenter Westwind, darüber eine Ostwindregion. Unsere Modellresultate zeigen, dass bei einer Emissionshöhe von 60 hPa (ca. 20 km) der winterliche Polarwirbel in der Nordhemisphäre in der QBO Westwindphase abgeschwächt wird. In der unteren Stratosphäre (100 hPa bis 20 hPa) zeigt sich zudem eine Verschiebung des hemisphärischen Transportes zwischen den Phasen der QBO mit jeweils um bis zu 20% geänderten Konzentrationen. Simulationen mit einer Emissionshöhe von 30 hPa (ca. 25 km) zeigen eine deutlich höhere vertikale Erstreckung der Westwindzone, was einen verminderten Transport von Sulfat und Ozon zu den Polen zur Folge hat, besonders bei Emissionen von 8 Mt S/Jahr, und damit eine abnehmende Ozonkonzentration in der Stratosphäre der gesamten mittleren und hohen Breiten. Die hier simulierten Auswirkungen der Erwärmung der Stratosphäre durch Sulfataerosole auf die Dynamik, QBO und den Spurenstofftransport sind mit Unsicherheiten behaftet, da die Zeitreihen im Sinne einer statistisch sicheren Aussage relativ kurz sind, sowie ebenfalls eine gewisse Abhängigkeit der Resultate vom verwendeten Modell nicht auszuschließen ist. Sie zeigen jedoch sehr deutlich, dass eine Injektion von Schwefel einen erheblichen Eingriff in die Dynamik der Stratosphäre bedeutet.

Insgesamt ergibt sich somit in Bezug auf die Auswirkungen des stratosphärischen Geoengineerings auf die Ozonschicht ein sehr differenziertes Bild, welches die Komplexität des betreffenden Systems abbildet. Des Weiteren gibt es eine Reihe von Unsicherheiten und nicht in Betracht gezogene Faktoren, gegenüber welchen die Resultate dieser Studie relativiert werden müssen. Zum einen ist die Mikrophysik der PSC weitgehend unbekannt. Aufgrund von Beobachtungen im Rahmen von Vulkanausbrüchen erscheint es plausibel, dass das Geoengineering die mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC ebenfalls beeinflussen dürfte. Wir konnten in dieser Studie aufzeigen, dass die Veränderung der mikrophysikalischen Eigenschaften der PSC das Potential eines entscheidenden Einflusses auf die Auswirkungen des Geoengineerings auf das Ozon besitzt. Nicht in Betracht gezogen wurde die Interaktion von Geoengineering und Vulkanausbrüchen, welche außer zusätzlichem Aerosol auch noch Halogene in die Atmosphäre einbringen würden. Da den Halogenen eine entscheidende Rolle beim Ozonabbau zukommt, und Aerosole den Halogenen die notwendige Reaktionsbasis zu ihrer Aktivierung bieten, könnten Vulkanausbrüche den Einfluss des Geoengineering auf die Ozonschicht maßgeblich verändern. Auch nicht in Betracht gezogen wurden Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehaltes durch Geoengineering aufgrund von physikalisch-technischen Voraussetzungen. Die Neubildung von Aerosolpartikeln in der Stratosphäre setzt das Vorhandensein einer gewissen Menge an Wassermolekülen voraus. Da die Stratosphäre u.a. durch sehr geringe Mengen an Wasserdampf gekennzeichnet ist, könnte Geoengineering mittels Sulfataerosol die Injektion einer gewissen Menge Wassers voraussetzen, welches seinerseits jedoch auch den HO<sub>x</sub>-Abbauzyklus des Ozons beeinträchtigen könnte, sowie die heterogene Aktivierung von Halogenen fördern könnte. Aus Beobachtungen von Ereignissen erheblicher troposphärischer Wasserdampfeinträge in die Stratosphäre ist bekannt, dass diese aufgrund nichtlinearer Prozesse zu beträchtlichem Abbau der Ozonschicht führen können.

Zusätzlich zu den Auswirkungen in der Stratosphäre – dem Gegenstand dieser Studie – wirkt sich das Geoengineering auf die klimatischen Bedingungen in der Troposphäre aus. Hier ist

durch die Veränderung der Strahlungsbilanz in der Troposphäre und durch Wechselwirkungen zwischen Stratosphäre und Troposphäre mit signifikanten Veränderungen zu rechnen. Vorhergehende Studien deuten insbesondere auf regional signifikante Abnahmen des jährlichen Niederschlags hin. Aufgrund der Modellunsicherheiten und der fundamentalwissenschaftlichen Unbekannten einerseits, und der Komplexität der global auf unterschiedlichen Zeitskalen ineinandergreifenden Prozesse andererseits, werden sich die genauen Auswirkungen des stratosphärischen Geoengineerings ohne großskalige Langzeitexperimente nicht mit ausreichender Zuverlässigkeit quantifizieren lassen, die allerdings einer effektiven Implementierung des stratosphärischen Geoengineerings vorgreifen würden. Dieser letztlich unausweichliche Umstand, dass stratosphärisches Geoengineering sich eigentlich erst mit dessen Umsetzung zuverlässig testen lässt, dürfte dessen Anwendbarkeit hinsichtlich der globalen Tragweite der bekannten Risiken entscheidend einschränken.

## 10 Quellenverzeichnis

- Anderson, J. G., Wilmouth, D. M., Smith, J. B., Sayres, D. S. (2012): UV Dosage Levels in Summer: Increased Risk of Ozone Loss from Convectively Injected Water Vapor, *Science*, 337:835-839.
- Aquila, V., Garfinkel, C. I., Newman, P. A., Oman, L. D., and Waugh, D. W. (2014): Modifications of the quasi-biennial oscillation by a geoengineering perturbation of the stratospheric aerosol layer, *Geophys. Res. Lett.*, 41, doi:10.1002/2013GL058818.
- Baldwin, M. P., et al. (2001): The quasi-biennial oscillation, *Rev. Geophys.*, 39:179-229.
- Bala, G., Duffy, P. B., and Taylor, K. E. (2008): Impact of geoengineering schemes on the global hydrological cycle, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 105:7'664-7'669, doi:10.1073/pnas.0711648105.
- Benduhn, F., and Lawrence, M. G. (2013): An investigation of the role of sedimentation for stratospheric solar radiation management, *J. Geophys. Res.*, 118(D):1-17, doi:10.1002/jgrd.50622.
- Brühl, C., Lelieveld, J., Höpfner, M., and Tost, H. (2013): Stratospheric SO<sub>2</sub> and sulphate aerosol, model simulations and satellite observations, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13:11'395-11'425, doi:10.5194/acpd-13-11395-2013.
- Budyko, M. I. (1977): *Climatic changes*. American Geophysical Society, Washington, D.C., doi:10.1029/SP010.
- Buchholz, J. (2005): *Simulations of Physics and Chemistry of Polar Stratospheric Clouds with a General Circulation Model*, Dissertation, Fachbereich Physik, Johannes Gutenberg Universität Mainz.
- Calvo, N., Giorgetta, M. A., and Pena-Ortiz, C. (2007): Sensitivity of the boreal winter circulation in the middle atmosphere to the quasi-biennial oscillation in MAECHAM5 simulations, *J. Geophys. Res.*, 112, D10124, doi:10.1029/2006JD007844.
- Crutzen, P. J. (2006): Albedo enhancement by stratospheric sulfur injections: A contribution to resolve a policy dilemma?, *Clim Change*, 77:211-219.
- Deshler, T., Johnson, B. J., and Rozier, W. R. (1994): Changes in the Character of Polar Stratospheric Clouds over Antarctica in 1992 due to the Pinatubo Volcanic Aerosol, 21(4):273-276.
- English J.M., Toon, O. B., and Mills, M. J. (2012): Microphysical simulations of sulfur burdens from stratospheric sulfur geoengineering, *Atmos. Chem. Phys.*, 12:4'775-4'793, doi:10.5194/acp-12-4775-2012.
- Eyring, V., Shepherd, T., and Vaugh, D., eds. (2010): *SPARC Report on the Evaluation of Chemistry Climate Models*, SPARC Report No. 5, <http://www.atmosp.physics.utoronto.ca/SPARC>.
- Eyring, V., et al. (2013): Overview of IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) Community Simulations in Support of Upcoming Ozone and Climate Assessments, *SPARC Newsletter* No. 40:48-66.
- Fromm, M., Alfred, J., and Pitts, M. (2003): A unified, long-term, high-latitude stratospheric aerosol and cloud database using SAM II, SAGE II, and POAM II/III data: Algorithm description, database definition, and climatology, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 4366, doi:10.1029/2002JD002772.
- Giorgetta, M. A., Bengtsson, L., and Arpe, K. (1999), An investigation of QBO signals in the east Asian and Indian monsoon in GCM experiments, *Climate Dyn.*, 15:435-450.

- Giorgetta, M. A., Manzini, E., Roeckner, E., Esch, M., and Bengtsson, L. (2006) Climatology and forcing of the quasi-biennial oscillation in the MAECHAM5 model, *J. Climate*, 19:3'882-3'901.
- Giorgetta, M., et al. (2013): Climate and carbon cycle changes from 1850 to 2100 in MPI-ESM simulations for the coupled model intercomparison project phase 5, *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 5, doi:10.1002/jame.20038.
- Graf, H.-F., Li, Q., and Giorgetta, M. A. (2008): Volcanic effects on climate: revisiting the mechanisms. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:4'503-4'511.
- Heckendorn, P., Weisenstein, D., Fueglistaler, S., Luo, B. P., Rozanov, E., Schraner, M., Thomason, L. W., and Peter, T. (2009): The impact of geoengineering aerosols on stratospheric temperature and ozone, *Environ. Res. Lett.*, 4, doi:10.1088/1748-9326/4/4/045108.
- Hofmann, D. J., and Oltmanns, S. J. (1994): Anomalous Antarctic Ozone During 1992: Evidence for Pinatubo Volcanic Aerosol Effects, *J. Geophys. Res.*, 98(D10):18'555-18'561.
- Holton, J. R., and Lindzen, R. S. (1972): An updated theory for the quasi-biennial cycle of the tropical stratosphere. *J. Atmos. Sci.*, 29:1'076-1'080.
- Holton, J. R., and Tan, H.-C. (1980): The influence of the equatorial quasi-biennial oscillation on the global circulation at 50 mb, *J. Atmos. Sci.*, 37:2'200-2'208.
- Holton, J. R., and Tan, H.-C. (1982): The quasi-biennial oscillation in the Northern Hemisphere lower stratosphere, *J. Meteorol. Soc. Japan*, 60:140-147.
- Jöckel, P., Tost, H., et al. (2006): The atmospheric chemistry general circulation model ECHAM5/MESy1: consistent simulation of ozone from the surface to the mesosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 6:5'067-5'104.
- Jones, A., Haywood, J., Boucher, O., Kravitz, B., and Robock, A. (2010): Geoengineering by stratospheric SO<sub>2</sub> injection: results from the Met Office HadGEM2 climate model and comparison with the Goddard Institute for Space Studies ModelE. *Atmos. Chem. Phys.*, 10:5'999-6'006, doi:10.5194/acp-10-5999-2010.
- Kokkola, H., Hommel, R., Kazil, J., Niemeier, U., Partanen, A.-I., Feichter, J., and Timmreck, C. (2009): Aerosol microphysics modules in the framework of the ECHAM5 climate model intercomparison under stratospheric conditions., *Geoscientific Model Development*, 2:97-112, <http://www.geosci-model-dev.net/2/97/2009/>.
- Kravitz, B., Robock, A., Boucher, O., Schmidt, H., Taylor, K. E., Stenchikov, G., and Schulz, M. (2011): The Geoengineering Model Intercomparison Project (GeoMIP). *Atmospheric Science Letters*, 12:162-167, doi:10.1002/asl.316.
- Lacis, A., Hansen, J., and Sato, M. (1992): Climate forcing by stratospheric aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 19(15):1'607-1'610.
- Lohmann, U. and Feichter, J. (2005): Global indirect aerosol effects: A review, *Atmos. Chem. Phys.*, 5:715-737, doi:10.5194/acp-5-715-2005.
- Lowe, D., and MacKenzie, A. R. (2008): Polar stratospheric cloud microphysics and chemistry, *J. Atm. and Sol.-Terres. Phys.*, 70:13-40.
- Mote, P. W., K. H. Rosenlof, J. R. Holton, R. S. Harwood, and Waters, J. W. (1996): An atmospheric tape recorder: The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, 101:3'989-4'006.

NASA (2014): Studying Earth's Environment From Space, June 2000, <http://www.ccpo.odu.edu/SEES/index.html>.

Niemeier, U., Timmreck, C., Graf, H.-F., Kinne, S., Rast, S., and Self, S. (2009): Initial fate of fine ash and sulfur from large volcanic eruptions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9:9'043-9'057, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/9043/2009/>.

Niemeier, U., Schmidt, H., and Timmreck, C. (2011): The dependency of geoengineered sulfate aerosol on the emission strategy, *Atmos. Sci. Lett.*, 12:189–194, doi:10.1002/asl.304.

Niemeier, U., Schmidt, H., Alterskjær, K., and Kristjansson, J. E. (2013): Solar irradiance reduction via climate engineering: Impact of different techniques on the energy balance and the hydrological cycle, *JGR*, 118, (2013), 11905-11917, doi:10.1002/2013JD020445.

Peter, Th. (1997): Microphysics and Heterogeneous Chemistry of Polar Stratospheric Clouds, *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 48:785–822.

Pierce, J.R., Weisenstein, D.K., Heckendorn, P., Peter, T., and Keith, D.W. (2010): Efficient formation of stratospheric aerosol for climate engineering by emission of condensable vapor from aircraft, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L18805, doi:10.1029/2010GL043975.

Pringle, K, Tost, H., Metzger, S., et al. (2010): Description and evaluation of GMXe: a new aerosol submodel for global simulations (v1), *Geosci. Model Devel.*, 3:391–412.

Rasch, P.J., Crutzen, P.J., and Coleman, D.B. (2008), Exploring the geoengineering of climate using stratospheric sulfate aerosols: The role of particle size, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L02809, doi:10.1029/2007GL032179.

Rickels, W.; Klepper, G.; Dovert, J.; Betz, G.; Brachatzek, N.; Cacean, S.; Güssow, K.; Heintzenberg J.; Hiller, S.; Hoose, C.; Leisner, T.; Oeschle, A.; Platt, U.; Proelß, A.; Renn, O.; Schäfer, S.; Zürn M. (2011): Gezielte Eingriffe in das Klima? Eine Bestandsaufnahme der Debatte zu Climate Engineering. Sondierungsstudie für das Bundesministerium für Bildung und Forschung.

Robock, A. (2000): Volcanic Eruptions and Climate, *Rev. Geophys.*, 38(2):191-219.

Robock, A., Oman, L., and Stenchikov, G. L. (2008): Regional climate responses to geoengineering with tropical and Arctic SO<sub>2</sub> injections, *J. Geophys. Res.*, 113, D16101, doi:10.1029/2008JD010050.

Roeckner, E., Baeuml, G., Bonaventura, L., Brokopf, R., Esch, M., Giorgetta, M., Hagemann, S., Kirchner, I., Kornblueh, L., Manzini, E., Rhodin, A., Schlese, U., Schulzweida, U., and Tompkins, A. (2003): The atmospheric general circulation model ECHAM5 – Part I, Tech./ rep., MPI Report No. 349.

Royal Society (2009), *Geoengineering the climate: Science, governance and uncertainty*, London, RS Policy document, 10/09.

Schmidt, H., Alterskjær, K., Bou Karam, D., Boucher, O., Jones, A., Kristjansson, J. E., Niemeier, U., Schulz, M., Aaheim, A., Benduhn, F., Lawrence, M., und Timmreck, C. (2012): Solar irradiance reduction to counteract radiative forcing from a quadrupling of CO<sub>2</sub>: climate responses simulated by four earth system models, *Earth System Dynamics* 3:63-78, doi:10.5194/esd-3-63-2012, <http://www.earth-system-dynam.net/3/63/2012/>.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. (2006): *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, 2nd edition, J. Wiley, New York.

Stier, P., Feichter, J., Kinne, S., Kloster, S., Vignati, E., Wilson, J., Ganzeveld, L., Tegen, I., Werner, M., Balkanski, Y., Schulz, M., Boucher, O., Minikin, A., and Petzold, A. (2005): The aerosol climate model ECHAM5-HAM, *Atmos. Chem. Phys.*, 5:1'125-1'156.

Thomas, M. A., Giorgetta, M. A., Timmreck, C., Graf, H.-F., and Stenchikov, G. (2009): Simulation of the climate impact of Mt. Pinatubo eruption using ECHAM5. Part-II: Sensitivity to the phase of the QBO and ENSO, *Atmos. Chem. Phys.*, 9:3'001-3'009.

Thomason, L., and Peter, Th., eds. (2006): Assessment of Stratospheric Aerosol Properties, SPARC Report No. 4, <http://www.atmosp.physics.utoronto.ca/SPARC>.

Tilmes, S., Müller, R., and Salawitch, R. (2008): The Sensitivity of Polar Ozone Depletion to Proposed Geoengineering Schemes, *Science*, 320:1201-1204, DOI: 10.1126/science.1153966.

Tilmes, S., Garcia, R. R., Kinnison, D. E., Gettelman, A., and Rasch, P. J. (2009): Impact of geoengineered aerosols on the troposphere and stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 114(D12), 305, doi:10.1029/2008JD011420.

Tilmes, S., Fasullo, J., Lamarque, J.-F., Marsh, D., Mills, M., Alterskjær, K., Boucher, O., Cole, J., Curry, C., Haywood, J., Irvine, P., Ji, D., Jones, A., BouKaram, D., Kravitz, B., Kristjansson, J. E., Moore, J., Muri, H. O., Niemeier, U., Rasch, P. J., Robock, A., Schmidt, H., Schulz, M., Shuting, Y., B.Singh, Watanabe, S., and Yoon, J.-H. (2013): The Hydrologic Impact of Geoengineering in the Geoengineering Model Intercomparison Project (GeoMIP), *J. Geophys. Res.*, 118(19):11'036-11'058, doi:10.1002/jgrd.50868.

Timmreck, C. (2012): Modeling the climatic effects of volcanic eruptions, invited review, *Wiley Interdisciplinary Reviews: Climate Change*, doi: 10.1002/wcc.192.

Toohey, M., Krüger, K., Niemeier, U. and Timmreck, C. (2011): The influence of eruption season on the global aerosol evolution and radiative impact of tropical volcanic eruptions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11:12'351-12'367, DOI 10.5194/acp-11-12351-2011.

Trenberth, K. and Dai, A. (2007): Effects of Mount Pinatubo volcanic eruption on the hydrological cycle as an analog of geoengineering. *Geophys. Res. Lett.*, 34, L15702, doi:10.1029/2007GL030524.

Trepte, C. R., Hitchman, M. H. (1992), The stratospheric tropical circulation deduced from aerosol satellite data, *Nature*, 355:626–628.

Vaughan, N.E. and Lenton, T.M. (2011): A review of climate geoengineering proposals. *Climatic Change*, doi:10.1007/s10584-011-0027-7.

Vignati, E. (2004): M7: An efficient size-resolved aerosol microphysics module for large-scale aerosol transport models, *J. Geophys. Res.*, 109, D22202, doi:10.1029/2003JD004485.

Wang, P.-H., Minnis, P., and Yue, G. K. (1995): Extinction coefficient (1  $\mu\text{m}$ ) properties of high-altitude clouds from solar occultation measurements (1985-1990): Evidence of volcanic aerosol effect, *J. Geophys. Res.*, 100(D2):3'181-3'199.

Ward, S. M., Deshler, T., and Hertzog, A. (2014): Quasi-Lagrangian measurements of nitric acid trihydrate formation over Antarctica, *J. Geophys. Res.*, 119(1):248-259, doi:10.1002/2013JD020326.

Waught, W.W. and Polvani, L. M. (2010): Stratospheric Polar Vortices, in: *The Stratosphere: Dynamics, Transport, and Chemistry; Geophysical Monograph Series, Vol. 190*, DOI:10.1029/2009GM000887, <http://www.columbia.edu/~lmp/paps/waugh+polvani-PlumbFestVolume-2010.pdf>

Untersuchung und Bewertung von Methoden zum Geo-Engineering, die die Zusammensetzung der Atmosphäre beeinflussen.