

## Modellierung des Vertikaltransports von Aerosolpartikeln in der bodennahen Luftschicht

G. KRAMM, Garmisch-Partenkirchen

**Zusammenfassung.** Es werden die integralen Modellgleichungen zur Bestimmung der trockenen Deposition und Resuspension polydisperser Aerosolpartikeln in der bodennahen Luftschicht über aerodynamisch glatten und rauhen Oberflächen hergeleitet und diskutiert. Diese Modellgleichungen beruhen auf den mikrometeorologischen Gesetzmäßigkeiten des höheninvarianten Transports von Impuls, sensibler Wärme und Materie. Zur Parametrisierung der Flüsse im turbulenten Bereich der bodennahen Luftschicht werden Gradient-Ansätze verwendet. Die Berechnung des molekular-turbulenten Transports in der darunterliegenden Unterschicht basiert für aerodynamisch glatte Oberflächen ebenfalls auf Gradient-Ansätzen und für aerodynamisch rauhe Oberflächen auf „sublayer“-Stanton-Zahlen sowie der Reynoldsschen Analogie zwischen Konzentrations-, Temperatur- und Windgeschwindigkeitsverteilung. Modellergebnisse, die auf den Meßwerten von Wind, Trocken- und Feuchttemperatur sowie  $\text{NH}_4^+$ -Partikeln des GREIV I-Experiments beruhen, werden vorgestellt und diskutiert.

### Modeling of the vertical transport of aerosol particles in the atmospheric surface layer

**Summary.** The integral model equations for determining the dry deposition and resuspension of polydispers aerosol particles in the surface layer to and from aerodynamic smooth and rough surfaces are derived and discussed. These model equations are based on micrometeorological ideas of height-invariant vertical transfer of momentum, sensible heat and matter. The fluxes in the turbulent region of the surface layer are parameterized by flux-gradient relationships. Calculation of molecular-turbulent fluxes in the underlying sublayer is based on flux-gradient relationships for aerodynamic smooth surfaces and sublayer Stanton numbers as well as Reynolds analogy between concentration, temperature and wind velocity distributions for aerodynamic rough surfaces. Model results which were derived from observation data of wind velocity, dry- and wet-bulb temperatures and  $\text{NH}_4^+$ -concentrations collected in the GREIV I experiment are presented and discussed.

### 1. Einleitung

Die trockene Deposition spielt als Senke im Massenbudget von Spurengasen und Aerosolpartikeln in der bodennahen Luftschicht eine wichtige Rolle. Sie trägt wesentlich zur Reinigung dieser Luftschicht bei. Für die Vegetation und den Erdboden sowie für die Gewässer bedeutet der atmosphärische Massenverlust allerdings eine Belastung, die — so muß man auf Grund der vielen beobachtbaren irreparablen Schäden vermuten — einen wesentlichen Beitrag zur Zerstörung unserer natürlichen Umgebung leistet. Vielmehr als die Aufstellung des atmosphärischen Spurenstoffbudgets erfordert deshalb die Erforschung der Schadwir-

kungen die Quantifizierung des atmosphärischen Spurenstoffeintrags.

Zur direkten Bestimmung der trockenen Deposition von Aerosolpartikeln werden entweder künstliche Kollektorflächen (z. B. Teflon-Platten [1]), „wet/dry“-Sammelgeräte (z. B. [2, 3, 4]) oder „eddy correlation“-Meßsysteme (z. B. [5, 6, 7]) verwendet. „Wet/dry“-Sammelgeräte sind einfach zu handhaben; sie können auch bei Sammelperioden von 14 Tagen und mehr eingesetzt werden. Wegen der erforderlichen langen Sammelzeiten, die ein Verknüpfen des Sammelergebnisses mit den Transport- und Diffusionsprozessen einer bestimmten Wettersituation behindern, der Formgebung der Sammeltrichter, der Verunreinigung durch Vögel, Insekten, „sea spray“ usw. sowie der in den Sammelgefäßen ablaufenden chemischen Prozesse sind solche Geräte nur bedingt verwendbar. Da die Transportprozesse in unmittelbarer Nähe der Sammeltrichter sich allerdings von denen in unmittelbarer Nähe natürlicher Oberflächen deutlich unterscheiden und nur im Falle großer Aerosolpartikeln, die im wesentlichen unter dem Einfluß der Gravitation deponieren, ähnliche Transportmechanismen zu erwarten sind, ist die Übertragbarkeit der so gewonnenen Ergebnisse auf natürliche Oberflächen stark eingeschränkt. Für künstliche Kollektorflächen, die zu Sammelzwecken an exponierter Stelle horizontal ausgerichtet werden, gelten die aufgezählten Kritikpunkte nahezu in gleicher Weise.

Das Anwenden der „eddy correlation technique“ erfordert wegen der simultan zu messenden Wind- und Konzentrationsfluktuationen einen so großen meßtechnischen Aufwand, daß ein kontinuierlicher Meßbetrieb allenfalls im Rahmen von Feldexperimenten angestrebt wird. Der Einfluß, den das Meßsystem auf den zu bestimmenden Partikeltransport ausübt, ist gering. Da solche Messungen zumeist in 5—6 m Höhe über Grund durchgeführt werden (z. B. [6, 7]), können die so erzielten Resultate nur dann als atmosphärischer Eintrag verwendet werden, wenn die Höhenabhängigkeit des Partikelflusses in der darunterliegenden Luftschicht vernachlässigbar gering ist. Über natürlichen Wasseroberflächen stellt sich eine Höheninvarianz sicherlich nur in ganz speziellen Situationen ein.

Neben der „eddy correlation technique“ kommt als weiteres mikrometeorologisches Verfahren die sogenannte Gradient-Methode in Betracht. Sie zählt zu den indirekten Verfahren und beruht auf der Annahme, daß die turbulenten Flüsse von Impuls, sensibler Wärme und Materie durch Gradientbeziehungen — im Sinne einer Schließung erster Ordnung — parametrisiert werden können [8, 9, 10, 11, 12].

Die Gradient-Methode wird zur Berechnung der trockenen Deposition von Spurengasen an Hand gemessener Vertikalprofile von Wind, Temperatur und Feuchte sowie Konzentrationen am häufigsten herangezogen [13]. Obwohl sie auch bereits mehrfach bei der Bestimmung der trockenen

Deposition von kleinen Aerosolpartikeln mit Erfolg angewendet wurde (z. B. [14, 15, 16, 17]), erlangte sie vergleichsweise nur geringe Bedeutung.

Ergebnisse von Modelluntersuchungen zum Transfer monodisperser Aerosolpartikeln über aerodynamisch glat-

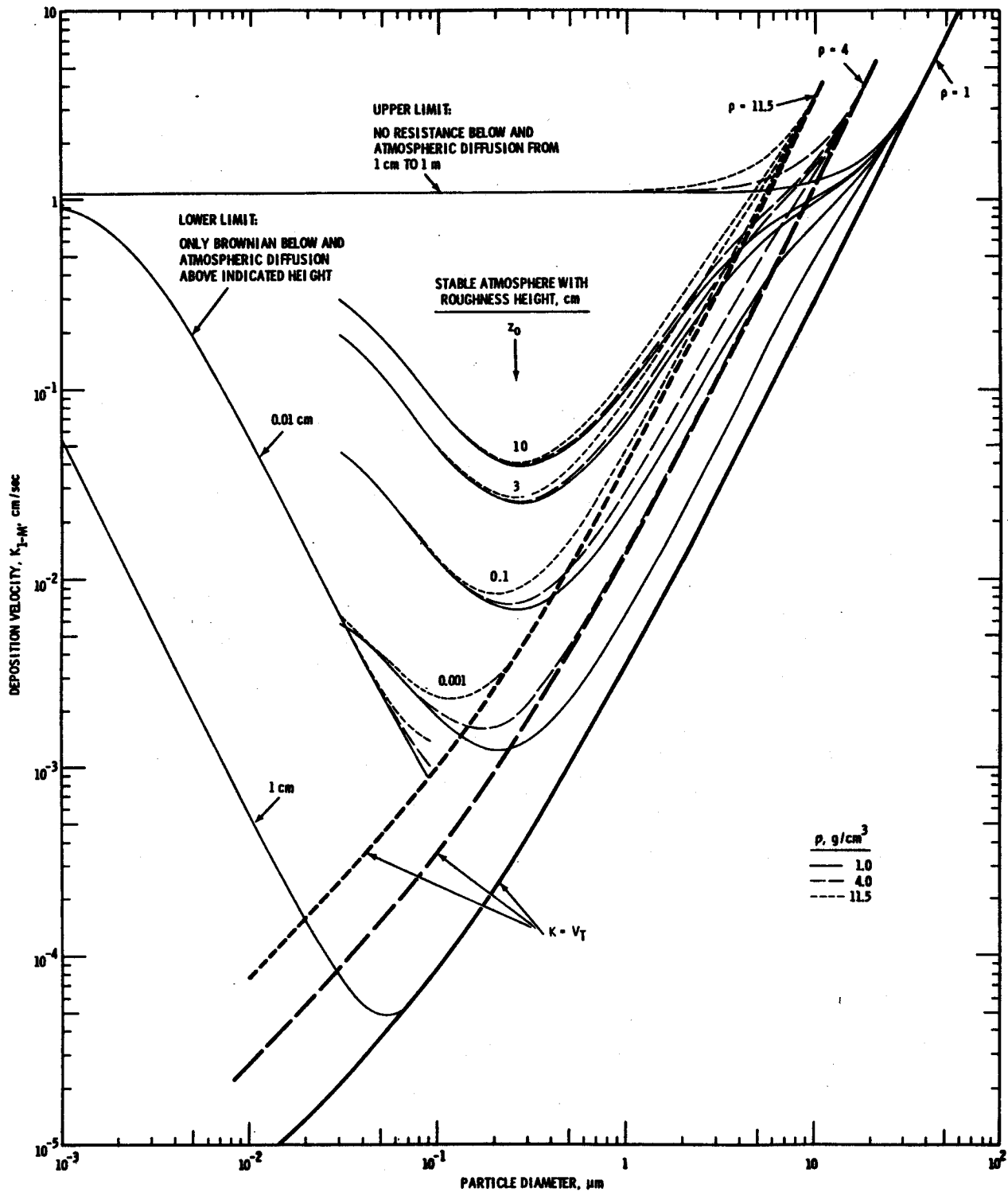


Abb. 1. Für  $u_* = 30$  cm/s und Partikeldichten von 1, 4 und 11,5 g/cm<sup>3</sup> berechnete Depositionsgeschwindigkeiten monodisperser Aerosolpartikeln in der Höhe  $z = 1$  m (nach Sehmel und Hodgson [19]).

ten und rauhen Oberflächen (z. B. [18, 19, 20, 21, 22]) veranschaulichen, daß die Depositionsgeschwindigkeit im Aitkenkernbereich ( $r < 0,1 \mu\text{m}$ ) jeweils durch Brownsche Diffusion und im Bereich der Riesenteilchen ( $r > 1 \mu\text{m}$ ) jeweils durch Sedimentationseffekte limitiert wird sowie im Bereich der großen Teilchen ( $0,1 \mu\text{m} \leq r \leq 1 \mu\text{m}$ ), in dem sich ein großer Massenanteil des atmosphärischen Aerosols befindet [23], ihr Minimum besitzt (siehe Abb. 1). Diese Abhängigkeit der Depositionsgeschwindigkeit von der Partikelgröße wird durch die Ergebnisse zahlreicher Windkanaluntersuchungen (z. B. [18, 24, 25]) im wesentlichen bestätigt, wobei die gemessenen Depositionsgeschwindigkeiten im allgemeinen zu etwas höheren Werten tendieren. Die beste Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen von Modell- und Windkanaluntersuchungen ergibt sich für aerodynamisch glatte Oberflächen (siehe auch [26]).

Die Mehrheit der natürlichen und anthropogen erzeugten Aerosolpartikeln besitzen nicht die gleiche Größe; sie sind polydispers und können durch verschiedene Größenverteilungen beschrieben werden [27]. Da je nach Teilchengröße unterschiedliche physikalische Transportprozesse wirksam werden, ist es nicht leicht, die Resultate der Windkanal- und Modelluntersuchungen zur Deposition monodisperser Aerosolpartikeln mit den Ergebnissen von Feldexperimenten in Einklang zu bringen [28]. Die polydisperse Struktur des atmosphärischen Aerosols darf jedoch bei der Herleitung der Modellgleichungen zur Bestimmung der trockenen Deposition nicht außer acht gelassen werden.

Die Resuspension von Aerosolpartikeln wurde zuerst nur in Zusammenhang mit der Bodenerosion behandelt (z. B. [29, 30, 31]). Als jedoch die oberirdischen Atombombentests infolge der trockenen und nassen Deposition von Plutonium und andern Actiniden eine großflächige Kontamination des Bodens sowie der Vegetation verursachten [32], rückte die Fragestellung, inwieweit die vom Wind, Straßenverkehr usw. aufgewirbelten und anschließend inhalieren radioaktiven Substanzen auch in der Zeit nach der Kontamination eine Gefahr für die Gesundheit von Mensch und Tier darstellen, immer mehr in den Vordergrund des wissenschaftlichen Interesses (siehe hierzu auch [28, 33, 34]). Dieses Interesse wurde insbesondere durch die Plutonium-Verseuchung des Bodens auf dem Gelände des Kernkraftwerks „Rocky Flats“ (z. B. [35, 36]) sowie durch den Reaktorunfall von Tschernobyl wachgehalten. Die Resuspension von Aerosolpartikeln wurde sowohl im Windkanal (z. B. [37]) als auch in zahlreichen Feldexperimenten (siehe [28, 34]) untersucht.

Im vorliegenden Beitrag werden die integralen Modellgleichungen zur Bestimmung der trockenen Deposition und Resuspension polydisperser Aerosolpartikeln in der bodennahen Luftschicht über aerodynamisch glatten und rauhen Oberflächen hergeleitet und diskutiert. Diese Modellgleichungen beruhen auf den mikrometeorologischen Gesetzmäßigkeiten des höheninvarianten Transports von Impuls, sensibler Wärme und Materie. Phoretische sowie durch externe Kräfte verursachte Transporteffekte werden vernachlässigt. Zur Parametrisierung der Flüsse im turbulenten Bereich der bodennahen Luftschicht werden Gra-

dient-Ansätze verwendet. Die Berechnung des molekular-turbulenten Transports in der darunterliegenden Unterschicht basiert für aerodynamisch glatte Oberflächen ebenfalls auf Gradient-Ansätzen und für aerodynamisch rauhe Oberflächen auf „sublayer“-Stanton-Zahlen sowie der Reynoldsschen Analogie zwischen Konzentrations-, Temperatur- und Windgeschwindigkeitsverteilung. Zur Bestimmung der Partikelflüsse sind nur die im turbulenten Bereich der bodennahen Luftschicht simultan gemessenen Vertikalprofile von Partikelkonzentration, Windgeschwindigkeit, Trocken- und Feuchttemperatur sowie die Größenverteilung des Partikelensembles erforderlich.

Modellergebnisse, die auf den Meßwerten von Wind, Trocken- und Feuchttemperatur sowie  $\text{NH}_4^+$ -Partikeln des GREIV I-Experiments beruhen [38], werden vorgestellt und diskutiert.

## 2. Theoretische Grundlagen

In der Prandtl-Schicht, dem untersten Bereich der atmosphärischen Grenzschicht (ABL), sind die Wechselwirkungen zwischen der Luft und der Erdoberfläche bzw. der Vegetation so stark, und die Anpassung der Luftströmung an die Beschaffenheit der Oberfläche erfolgt so rasch, daß quasi-stationäre Verhältnisse innerhalb dieser Schicht angenommen werden dürfen. Für die rasche Anpassung sind im wesentlichen die vertikalen Flüsse von Impuls, sensibler Wärme und Wasserdampf verantwortlich, da die Responsezeiten dieser Transportprozesse bei einer Referenzhöhe von  $z_R = 20 \text{ m}$  im allgemeinen kleiner als 1 min [39] und damit erheblich kleiner als die Responsezeiten der übrigen Effekte sind. Das bedeutet, daß über ebenem, gleichförmigem Terrain externe Kräfte in Relation zu den Reibungskräften vernachlässigt werden dürfen. Ebenso vernachlässigbar sind die Wirkungen, die durch viskose Reibung sowie emittierte und absorbierte Strahlung hervorgerufen werden; denn diese sind sehr viel kleiner als die Wärmetransfereffekte<sup>1</sup>. In der Prandtl-Schicht können daher die vertikalen Flüsse von Impuls, sensibler Wärme und Wasserdampf als höheninvariant betrachtet werden. Mikrometeorologische Felduntersuchungen über ebenem Gelände ergaben, daß die Höhenabhängigkeit dieser Flüsse in der bodennahen Luftschicht von der Dicke  $z_{\text{max}} = \text{„fetch“}/100$  („fetch“ = Abstand zwischen der in Windrichtung liegenden Oberflächeninhomogenität und dem Meßort) gering ist (siehe z. B. [40]). Das Konzept höheninvarianter Vertikaltransporte stellt daher ein probates Hilfsmittel dar, solche Flüsse und die zugehörigen Vertikalprofile von Wind, potentieller Temperatur und spezifischer Feuchte an Hand von Mastmessungen über ebenem Gelände ausreichend genau zu bestimmen.

<sup>1</sup> Phasenübergänge des Wassers werden im Rahmen von Untersuchungen zur trockenen Deposition bzw. Resuspension von Aerosolpartikeln grundsätzlich ausgeklammert, so daß die damit verbundenen Wärme- und Masseneffekte keine Rolle spielen.

Für den vertikalen Spurenstofftransport ergeben sich Responzeiten, die mit denen des Wärme- und Wasserdampftransports vergleichbar sind. Zur Bestimmung vertikaler Partikelflüsse kann das „constant flux“-Konzept jedoch nur dann herangezogen werden, wenn stationäre Verhältnisse vorherrschen und die durch horizontal-inhomogene Konzentrationsverteilungen sowie mikrophysikalische und chemische Prozesse („gas to particle conversion“, Koagulation, Wasserdampfsorption usw.) hervorgerufenen Wirkungen im Vergleich zu denen des Vertikaltransfers vernachlässigbar sind. Falls jedoch die Responzeiten der advektiven, mikrophysikalischen oder chemischen Prozesse sowie des Vertikaltransports von gleicher Größenordnung sind, führt die Annahme höheninvarianter Flüsse zu unrealistischen Ergebnissen [41, 42].

Unter Vernachlässigung phoretischer Effekte kann zur Beschreibung des vertikalen Partikelflusses in Abhängigkeit von der mittleren Konzentration  $c$  sowie des vertikalen Konzentrationsgradienten  $\partial c/\partial z$  folgender Ansatz verwendet werden (z. B. [13, 42]):

$$F_c = -(D_c + K_c) \frac{\partial c}{\partial z} - v_T c. \quad (1)$$

Hierin ist  $D_c$  der von der Größenverteilung des Partikelensembles und der Partikelform abhängige Brownsche Diffusionskoeffizient,  $K_c$  der Eddy-Diffusionskoeffizient und  $v_T$  die ebenfalls von der Größenverteilung des Partikelensembles und der Partikelform abhängige (beschleunigungsfreie) Sedimentationsgeschwindigkeit („terminal velocity“). Im Gegensatz zu dem in der Prandtl-Schicht nur geringfügig variierenden Brownschen Diffusionskoeffizienten hängt der Eddy-Diffusionskoeffizient sehr stark vom mechanisch und thermisch beeinflussten Turbulenzzustand der bodennahen Luftschicht und infolgedessen sehr stark von der Höhe ab. Diese Abhängigkeit ist eng mit der Höhenabhängigkeit der Eddy-Diffusionskoeffizienten für Impuls ( $K_m$ ) und sensibler Wärme ( $K_h$ ) verknüpft; denn wegen der empirisch belegten Ähnlichkeit zwischen turbulentem Wärme- und Wasserdampftransport [43, 44, 45] sowie der postulierten ähnlichen Transportmechanismen für Spurenstoffe und Wasserdampf wird an Stelle des noch offenen Eddy-Diffusionskoeffizienten  $K_c$  der hinreichend bekannte Eddy-Diffusionskoeffizient  $K_h$  für sensible Wärme verwendet [13].

Ein für das gesamte Partikelensemble repräsentativer Brownscher Diffusionskoeffizient kann an Hand der Definitionsbeziehung

$$D_c = \frac{\int_0^\infty n(\epsilon) \epsilon D_c(\epsilon) d\epsilon}{\int_0^\infty n(\epsilon) \epsilon d\epsilon} \quad (2)$$

berechnet werden. Hierin ist  $D_c(\epsilon)$  der Brownsche Diffusionskoeffizient für Aerosolteilchen der Masse  $\epsilon$  und  $n(\epsilon)$  die Größenverteilungsfunktion des Partikelensembles. Für sphärische Aerosolpartikeln erhält man:

$$D_c = \frac{\int_0^\infty n(r) r^3 D_c(r) dr}{\int_0^\infty n(r) r^3 dr}. \quad (3)$$

In diesem Falle läßt sich die Abhängigkeit des Brownschen Diffusionskoeffizienten von der Partikelgröße an Hand der „slip-flow“-korrigierten Einstein-Smoluchowski-Beziehung

$$D_c(r) = \frac{k T}{6 \pi \nu \rho_L r} (1 + \alpha Kn) \quad (4)$$

beschreiben. Hierin ist  $k$  die Boltzmann-Konstante,  $T$  die absolute Temperatur,  $\nu$  die kinematische Viskosität,  $\rho_L$  die Luftdichte,  $r$  der Teilchenradius,  $C_c = 1 + \alpha Kn$  die von der Knudsen-Zahl  $Kn = \lambda/r$  abhängige „slip-flow“-Korrektur nach Cunningham und  $\alpha = 1,257 + 0,4 \exp(-1,1/Kn)$  ein von der Knudsen-Zahl abhängiger Faktor [46]. Die „slip-flow“-Korrektur muß für sehr kleine Teilchen mit Radien, die von der Größenordnung der mittleren freien Weglänge  $\lambda$  der Luftmoleküle oder sogar kleiner als  $\lambda$  sind, berücksichtigt werden, da in solchen Fällen die Bedingung einer kontinuierlichen Umströmung der Aerosolteilchen nicht mehr erfüllt ist. Für  $Kn \ll 1$  sowie  $Kn \gg 1$  können folgende Approximationen verwendet werden:

$$\alpha = \begin{cases} 1,257 \text{ (bzw. } 0), & \text{falls } Kn \ll 1 \\ 1,657, & \text{falls } Kn \gg 1 \end{cases} \quad (5)$$

Wie Abb. 2 veranschaulicht, hüllen diese beiden Approximationen die exakte Funktion ein, wobei die Approximation für große Knudsen-Zahlen eine sehr gute Näherung für das gesamte Partikelspektrum darstellt.

Die Eddy-Diffusionskoeffizienten für Impuls und Wärme können an Hand folgender Beziehungen berechnet werden:

$$K_m = \kappa (z-d) u_* \begin{cases} (1-5 Ri) & , \text{ falls } 0 \leq Ri < Ri_{cr} \\ (1-16 Ri)^{1/4}, & \text{ falls } Ri < 0 \end{cases} \quad (6)$$

und

$$K_h = \begin{cases} K_m & , \text{ falls } Ri \geq 0 \\ K_m (1-16 Ri)^{1/4}, & \text{ falls } Ri < 0 \end{cases} \quad (7)$$

mit

$$Ri = \frac{g}{\Theta_m} \left( \frac{\partial \Theta}{\partial z} + 0,608 \Theta_m \frac{\partial q}{\partial z} \right) \left( \frac{\partial v_H}{\partial z} \right)^{-2}. \quad (8)$$

$Ri$  ist die Richardson-Zahl,  $Ri_{cr} = 0,2$  die kritische Richardson-Zahl,  $\kappa = 0,4$  die von-Kármán-Konstante,  $d$  die Nullpunktverschiebung,  $u_*$  die Schubspannungsgeschwindigkeit,  $g$  die Gravitationsbeschleunigung,  $\Theta$  die potentielle Temperatur,  $q$  die spezifische Feuchte,  $v_H$  der horizontale Windvektor und  $\Theta_m$  eine für die Prandtl-Schicht charakteristische Temperatur. Die Beziehungen (6) und (7) basieren

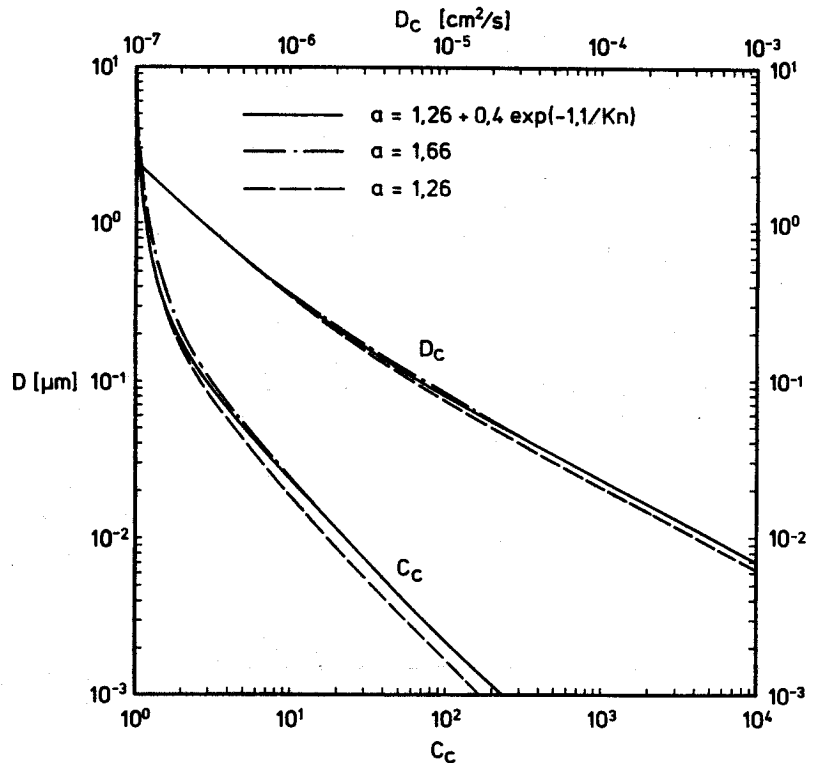


Abb. 2.: Diffusionskoeffizient  $D_c$  und „slip flow“-Korrekturfaktor  $C_c$  als Funktion des Partikeldurchmessers ( $T = 293,15 \text{ K}$ ,  $p_L = 1013,25 \text{ hPa}$ ).

auf den empirischen Ergebnissen, die von Dyer und Hicks [45] für instabile und von Webb [47] für stabile Luftschichtung ermittelt wurden. Bei der Herleitung der K-Ansätze wurden folgende Beziehungen zwischen den dimensionslosen Stabilitätsparametern  $Ri$  und  $\zeta = (z-d)/L$  verwendet:

$$Ri = \begin{cases} \frac{\zeta}{1 + 5\zeta}, & \text{falls } L > 0 \\ \zeta, & \text{falls } L < 0 \end{cases} \quad (9)$$

mit

$$L = \frac{u_*^2}{\kappa \frac{g}{\Theta_m} (\Theta_* + 0,608 \Theta_m q_*)} \quad (10)$$

der Monin-Obuchow-Stabilitätslänge [48].

Es ist bekannt, daß bei voll ausgeprägter Turbulenz die Beiträge durch Brownsche Diffusion im Vergleich zu den viel wirksameren turbulenten Transporten vernachlässigt werden dürfen. Diese Vereinfachung ist allerdings im untersten Bereich der Prandtl-Schicht, der molekular-turbulenten Unterschicht, nicht zulässig, da bei Annäherung an die Erdoberfläche die Eddy-Diffusionskoeffizienten stark abnehmen, zunächst die Werte von  $\nu$  und  $D_c$  erreichen und in der viskosen Unterschicht wegen des Verschwindens der Windgeschwindigkeitsfluktuationen an der Oberfläche sogar kleiner werden als die entsprechenden molekularen Transfereigenschaften.

Die für das gesamte Partikelensemble repräsentative Sedimentationsgeschwindigkeit kann an Hand der Definitionsbeziehung

$$v_T = \frac{\int_0^\infty n(\epsilon) \epsilon v_T(\epsilon) d\epsilon}{\int_0^\infty n(\epsilon) \epsilon d\epsilon} \quad (11)$$

berechnet werden. Hierin ist  $v_T(\epsilon)$  die endgültige (beschleunigungsfreie) Fallgeschwindigkeit eines Aerosolteilchens der Masse  $\epsilon$ . Für sphärische Aerosolpartikeln erhält man:

$$v_T = \frac{\int_0^\infty n(r) r^3 v_T(r) dr}{\int_0^\infty n(r) r^3 dr} \quad (12)$$

Die Sedimentationsgeschwindigkeit  $v_T(r)$  kann durch die „slip-flow“-korrigierte Stokessche Sedimentationsgeschwindigkeit

$$v_T(r) = \frac{2}{9} \frac{g}{\nu} \frac{\rho_P - \rho_L}{\rho_L} r^2 (1 + \alpha Kn) \quad (13)$$

bzw. wegen  $\rho_P \gg \rho_L$  ( $\rho_P$  ist die Partikeldichte)

$$v_T(r) = \frac{2}{9} \frac{g \rho_P}{\nu \rho_L} r^2 (1 + \alpha Kn) \quad (14)$$

ausgedrückt werden.

Die Größenverteilung  $n(r)$  ist im allgemeinen eine Funktion zeit- und ortsabhängiger mikrophysikalischer und

chemischer Wechselwirkungen. Die bei der Herleitung der nachfolgenden Gleichung (24) zur Berechnung des Partikel-flusses verwendete „constant flux“-Beziehung setzt jedoch stationäre Verhältnisse voraus. Zu Abschätzungszwecken können daher zeitlich invariante Größenverteilungsfunktionen verwendet werden, wie sie z. B. von Junge ( $r^{-3}$ -Verteilungsfunktion, [49]), Deirmendjian (modifizierte Gamma-Verteilungsfunktion, [50]) und Jaenicke (Summe dreier log-Normalverteilungsfunktionen, [51]) publiziert wurden. Von der „International Radiation Commission“ (IRC) wurde für urbane und industrielle Ballungsgebiete folgende aus 3 log-Normalverteilungsfunktionen gebildete SRA-Größenverteilungsfunktion (SRA = „Standard Radiation Atmosphere“) vorgeschlagen [52]:

$$\frac{dN}{dr} = n(r) = \frac{1}{r} \sum_{i=1}^3 \frac{N_i}{(2\pi)^{1/2} \ln \sigma_i} \exp \left\{ -\frac{(\ln(r/R_i))^2}{2(\ln \sigma_i)^2} \right\}$$

bzw. in normierter Form (15)

$$\frac{d(\ln N)}{d(\ln r)} = n^*(r) = \sum_{i=1}^3 \frac{\Omega_i}{(2\pi)^{1/2} \ln \sigma_i} \exp \left\{ -\frac{(\ln(r/R_i))^2}{2(\ln \sigma_i)^2} \right\}$$

mit (16)

$$N_i = \Omega_i N = \frac{\frac{C_i}{v_i}}{\sum_{i=1}^3 \frac{C_i}{v_i}} N \quad (17)$$

sowie

$$v_i = \frac{4}{3} \frac{\pi}{N_i} \int_0^\infty n_i(r) r^3 dr = \frac{4}{3} \pi R_i^3 \exp \{4,5 (\ln \sigma_i)^2\}. \quad (18)$$

$N = \sum N_i$  ist die Partikelzahl pro Volumeneinheit,  $N_i$  das Integral über die individuelle log-Normalverteilung,  $\sigma_i$  die geometrische Standardabweichung,  $R_i$  der geometrische mittlere Radius und  $C_i = N_i v_i / (\sum N_i v_i)$  das mit dem Gesamtvolumen normierte Teilvolumen. Die IRC gibt für diese Verteilung folgende Werte an:

Aerosolkomponente	$R_i$ ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_i$	$C_i$	$\Omega_i$
wasserlösliche Partikeln z. B. $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	$2,85 \cdot 10^{-2}$	2,239	0,61	$8,416 \cdot 10^{-2}$
staubähnliche Partikeln z. B. $(\text{SiO}_2)$	$4,71 \cdot 10^{-1}$	2,512	0,17	$2,125 \cdot 10^{-5}$
Rußpartikeln	$1,18 \cdot 10^{-2}$	2,000	0,22	$9,158 \cdot 10^{-1}$

Die SRA-Größenverteilung ist in normierter Form in Abb. 3 dargestellt.

Unter Berücksichtigung dieser Größenverteilungsfunktion erhält man für den Brownschen Diffusionskoeffizienten und die Sedimentationsgeschwindigkeit des Partikelensembles

$$D_c = \frac{k T}{6 \pi \nu \rho_L} \frac{\sum_{i=1}^3 \frac{\Omega_i}{(2\pi)^{1/2} \ln \sigma_i} \int_0^\infty r^1 (1 + \alpha \frac{\lambda}{r}) \exp \left\{ -\frac{(\ln(r/R_i))^2}{2(\ln \sigma_i)^2} \right\} dr}{\sum_{i=1}^3 \frac{\Omega_i}{(2\pi)^{1/2} \ln \sigma_i} \int_0^\infty r^2 \exp \left\{ -\frac{(\ln(r/R_i))^2}{2(\ln \sigma_i)^2} \right\} dr} \quad (19)$$

und

$$v_T = \frac{2}{9} \frac{g}{\nu \rho_L} \frac{\sum_{i=1}^3 \frac{\rho_{P_i} \Omega_i}{(2\pi)^{1/2} \ln \sigma_i} \int_0^\infty r^4 (1 + \alpha \frac{\lambda}{r}) \exp \left\{ -\frac{(\ln(r/R_i))^2}{2(\ln \sigma_i)^2} \right\} dr}{\sum_{i=1}^3 \frac{\Omega_i}{(2\pi)^{1/2} \ln \sigma_i} \int_0^\infty r^2 \exp \left\{ -\frac{(\ln(r/R_i))^2}{2(\ln \sigma_i)^2} \right\} dr} \quad (20)$$

Wegen der im „slip-flow“-Korrekturterm auftretenden Exponentialfunktion läßt sich das Integral im Zähler der jeweils rechten Gleichungsseite nicht elementar lösen. An Hand der für alle Partikelradien gültigen Beziehung

$$1,257 Kn \leq Kn (1,257 + 0,4 \exp(-1,1/Kn)) \leq 1,657 Kn$$

sowie der für diese Grenzfälle existierenden Lösungen

$$D_c = \frac{k T}{6 \pi \nu \rho_L} \frac{\sum_{i=1}^3 \Omega_i R_i \{ R_i \exp(2(\ln \sigma_i)^2) + \alpha \lambda \exp(0,5(\ln \sigma_i)^2) \}}{\sum_{i=1}^3 \Omega_i R_i^3 \exp(4,5 (\ln \sigma_i)^2)} \quad (21)$$

und

$$v_T = \frac{2}{9} \frac{g}{v \rho_L} \frac{\sum_{i=1}^3 \rho_{p,i} \Omega_i R_i^4 \{R_i \exp(12,5(\ln \sigma_i)^2) + \alpha \lambda \exp(8(\ln \sigma_i)^2)\}}{\sum_{i=1}^3 \Omega_i R_i^3 \exp(4,5(\ln \sigma_i)^2)} \quad (22)$$

kann man jedoch mit  $\alpha = 1,657$  jeweils ein oberes und mit  $\alpha = 1,257$  jeweils ein unteres Limit für den Brownschen Diffusionskoeffizienten und die Sedimentationsgeschwindigkeit des Partikelensembles berechnen. Für die willkürlich gewählten Größen  $T = 293,15 \text{ K}$ ,  $p_L = 1013,25 \text{ hPa}$  ( $p_L$  ist der Luftdruck) und  $\rho_{p,i} = 1 \text{ g/cm}^3$ ,  $i = 1, \dots, 3$ , erhält man folgende Ergebnisse:

$$D_c = \begin{cases} 4,87 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}, & \text{für } \alpha = 1,657 \\ 3,97 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}, & \text{für } \alpha = 1,257 \\ 1,17 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}, & \text{für } \alpha = 0 \end{cases}$$

und

$$v_T = \begin{cases} 0,4068 \text{ cm/s}, & \text{für } \alpha = 1,657 \\ 0,4063 \text{ cm/s}, & \text{für } \alpha = 1,257 \\ 0,4045 \text{ cm/s}, & \text{für } \alpha = 0 \end{cases}$$

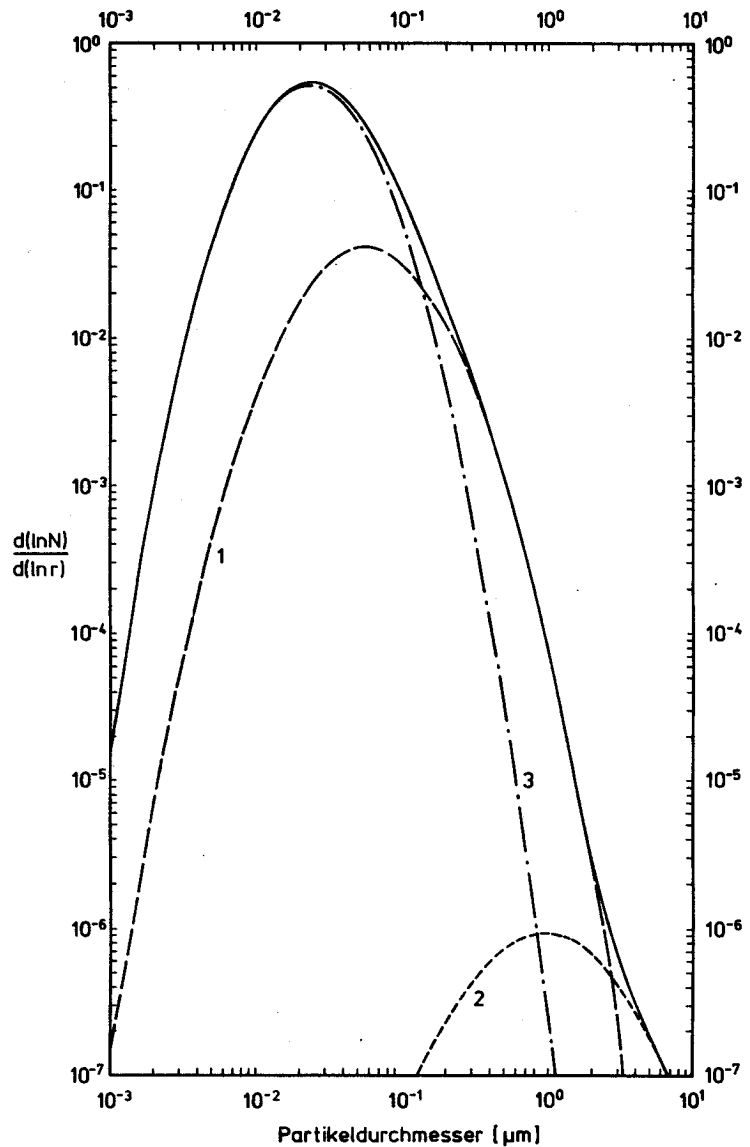


Abb. 3. Normierte SRA-Größenverteilung des urban-industriellen Aerosols (—). „Mode“ 1 (—): wasserlösliche Partikeln (z. B.  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ) „Mode“ 2 (---): staubähnliche Partikeln (z. B.  $\text{SiO}_2$ ) „Mode“ 3 (— · —): Rußpartikeln.

Die für den repräsentativen Brownschen Diffusionskoeffizienten ermittelten Ergebnisse veranschaulichen, daß erstens, eine Vernachlässigung des „slip-flow“-Korrekturterms ( $\alpha = 0$ ) nicht zulässig ist, und zweitens, die Brownsche Diffusion im Bereich voll ausgeprägter Turbulenz eine untergeordnete Rolle spielt.

Die für die Sedimentationsgeschwindigkeit des Partikelensembles erzielten Ergebnisse belegen, daß der Wert des oberen Limits sich nur unwesentlich von dem des unteren Limits unterscheidet. Da im Falle der SRA-Größenverteilung nur die großen staubähnlichen Partikeln (siehe „Mode“ 2 in Abb. 3) den wesentlichen Beitrag zur repräsentativen Sedimentationsgeschwindigkeit leisten (beide Beiträge sind nahezu identisch), hätte es genügt, nur mit der unkorrigierten Stokesschen Sedimentationsgeschwindigkeit ( $\alpha = 0$ ) zu arbeiten.

Die Berechnung des Brownschen Diffusionskoeffizienten sowie der Sedimentationsgeschwindigkeit wurde auch für die von Jaenicke [51] angegebenen Werte

Aerosolkomponente	$R_i$ ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_i$	$C_i$	$\Omega_i$
Mode 1	$6,51 \cdot 10^{-3}$	1,758	0,005	$7,258 \cdot 10^{-1}$
Mode 2	$7,14 \cdot 10^{-3}$	4,634	0,653	$8,113 \cdot 10^{-3}$
Mode 3	$2,48 \cdot 10^{-2}$	2,173	0,342	$2,661 \cdot 10^{-1}$

für urbanes Aerosol durchgeführt. Dabei ergaben sich folgende Werte (willkürlich gewählt:  $T = 293,15$  K,  $p_L = 1013,25$  hPa,  $\rho_{p,i} = 1$  g/cm<sup>3</sup>,  $i = 1, \dots, 3$ ):

$$D_c = \begin{cases} 1,49 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}, & \text{für } \alpha = 1,657 \\ 1,23 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}, & \text{für } \alpha = 1,257 \\ 4,33 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}, & \text{für } \alpha = 0 \end{cases}$$

und

$$v_T = \begin{cases} 59,37 \text{ cm/s}, & \text{für } \alpha = 1,657 \\ 59,36 \text{ cm/s}, & \text{für } \alpha = 1,257 \\ 59,35 \text{ cm/s}, & \text{für } \alpha = 0. \end{cases}$$

Die Ergebnisse veranschaulichen ebenfalls, daß eine Vernachlässigung des „slip-flow“-Korrekturterms bei der Berechnung des Brownschen Diffusionskoeffizienten nicht zulässig ist. Auch in diesem Fall trägt im wesentlichen der „Mode“ 2 zu Sedimentationsgeschwindigkeit des Partikelensembles bei (beide Beiträge sind ebenfalls nahezu identisch). Der „Mode“ 2 der Jaenicke-Verteilung enthält jedoch eine um mehrere Größenordnungen höhere Anzahl von Riesenteilchen als der der SRA-Größenverteilung. Der gewaltige Unterschied von zwei Größenordnungen zwischen den beiden berechneten Sedimentationsgeschwindigkeiten ist deshalb verständlich. Da in beiden Fällen die überwiegend aus Aitkenkernen ( $r < 0,1 \mu\text{m}$ ) und großen Teilchen ( $0,1 \mu\text{m} \leq r \leq 1 \mu\text{m}$ ) bestehenden übrigen Aerosolkomponenten keine nennenswerten Beiträge zur Sedimentationsgeschwindigkeit des Partikelensembles leisten, darf man bei der Behandlung von Partikelensembles, die nur aus kleinen Aerosolteilchen ( $r \leq 1 \mu\text{m}$ ) bestehen, den Effekt der Sedimentation im Vergleich zu den turbulenten Transport-

effekten vernachlässigen. Direkt an der Oberfläche ist  $v_T$  selbstverständlich gleich Null.

Normiert man den in einem bestimmten Niveau beobachteten Fluß mit der dort herrschenden mittleren Konzentration, so erhält man die sogenannte Depositionsgeschwindigkeit [54]

$$v_d = - \frac{F_c}{c} \quad (23)$$

Ebenso wie  $F_c$  und  $c$  ist  $v_d$  sowohl orts- als auch zeitabhängig. Falls jedoch die Depositionsgeschwindigkeit in einem bestimmten Referenzniveau  $z_R$  (z. B.  $z_R = 1$  m) für unterschiedliche oberflächeneigenschaften nur wenig variiert, kann der Depositionsfluß  $F_c (= -v_d(z_R) c(z_R))$  nach Gleichung (23) näherungsweise als eine Funktion der mittleren Konzentration  $c(z_R)$  in der Höhe  $z_R$  betrachtet und die während einer gewissen Zeitspanne (Tag, Monat, Jahr) deponierte Masse an Hand der Konzentrationsverteilung im Referenzniveau flächendeckend abgeschätzt werden.

Unter Beachtung dieses Aspekts erlangte die Depositionsgeschwindigkeit eine besondere Bedeutung. Die in den Tabellen 1 und 2 für verschiedene Spurengase und Aerosolpartikeln aufgelisteten Depositionsgeschwindigkeitsbereiche, die in einigen Fällen mehrere Größenordnungen umfassen, lassen allerdings die Ergebnisse solcher Abschätzungen als äußerst fragwürdig erscheinen.

Tabelle 1. Depositionsgeschwindigkeitsbereiche verschiedener Spurengase (nach Sehmel, [72]).

Anzahl der Referenzen	Deponiertes Spurengas	Depositionsgeschwindigkeitsbereich [cm/s]
14	SO <sub>2</sub>	0,04—7,5
20	I <sub>2</sub>	0,02—26
2	HF	1,6 —3,7
1	ThB	0,08—2,6
1	Fluoride	0,3 —2,4
1	Cl <sub>2</sub>	1,8 —2,1
7	O <sub>3</sub>	0,002—2,0
1	NO <sub>2</sub>	1,9
2	NO	Minus — 0,9
1	PAN	0,8
3	NO <sub>x</sub>	Minus — 0,5
1	H <sub>2</sub> S	0,015—0,38
1	CO <sub>2</sub>	0,3
1	(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> S	0,064—0,28
5	CH <sub>3</sub> I	10 <sup>-4</sup> —10 <sup>-2</sup>
1	Kr	2,3 · 10 <sup>-11</sup> max.

Zur Berechnung des Partikelflusses wird Gleichung (1) in der integralen Form

$$\int_{z_G}^{z_R} \frac{dz}{D_c + K_h} = - \int_{c_G}^{c_R} \frac{dc}{F_c + v_T c} \quad (24)$$

Tabelle 2. Depositionsgeschwindigkeitsbereiche von Aerosolpartikeln (nach Perseke, [2]).

Partikelgröße [µm]	Depositionsgeschwindigkeitsbereich [cm/s]	Bemerkungen	Autor
0,1—1,0	< 0,01—0,05	Windkanal	[24] [18] [25] [72]
0,1—1,0	0,05	theoretisch: $z_0 = 10$ cm $u_* = 30$ cm/s	[73] <sup>+</sup> [74] <sup>+</sup> [75] <sup>+</sup> [76] <sup>+</sup>
0,1—1,0	< 0,01		[73] <sup>+</sup>
0,1—1,0	0,1	Sulfat	[74] <sup>+</sup>
< 1,0	≈ 1,0	Feldexperiment (eddy correlation technique)	[75] <sup>+</sup> [76] <sup>+</sup>
0,3 (Sulfat)	0,08 (Mittel)	Gradient-Methode Therm. Schichtung:	[77] <sup>+</sup>
	0,04	neutral	
	0,025	stabil	
	0,16	instabil	
0,04 (Blei)	0,3	gemessen	[78] <sup>+</sup>
	0,13	berechnet	
0,05—0,2 (Aitkenkerne)	0,06	gemessen	
	0,02—0,5	berechnet	
1,8 (mono- disperses Aerosol)	0,05—0,12	gemessen	
	0,07	berechnet	
Blei	0,3	Laborgras	[79] <sup>+</sup>
Sulfat	0,2	bei OECD-LRTAB benutzt	[80] <sup>+</sup>
Sulfat	1,4	Gradient-Methode	[14]
0,63 (Sulfat)	1,1	Buche	[81] <sup>+</sup>
0,78 (Blei)	0,9	Buche	
< 1,0	0,2—0,7	Filterpapier, verschiedene Spurenstoffe	[82] <sup>+</sup>
Sulfat	0,23—0,27	Teflonschale Bergerhoff-Gefäß:	[83] <sup>+</sup> [2]
0,4*	0,3	Sulfat	
0,7*	0,33	Nitrat	
4,0*	1,13	Chlorid Bergerhoff-Gefäß:	[84] <sup>+</sup>
0,4*	0,07	Blei	
2,0*, 0,85*	0,23	Cadmium	
2,0*	0,95	Mangan	
3,0*	1,5	Eisen	

\* Mass Median Diameter (MMD) nach Rahn [85]<sup>+</sup>

+ Zitiert nach Perseke [2]

verwendet, wobei  $F_c$  und  $v_T$  als höheninvariant betrachtet werden.  $c_R$  ist die Konzentration (Umgebungskonzentration) in der Referenzhöhe  $z_R$  ( $\leq z_{max}$ ) und  $c_G$  die Konzentration in der Höhe  $z_G$ . Die linke Seite dieser Gleichung entspricht dem atmosphärischen Gesamtwiderstand  $r_a$ , den die bodennahe Luftschicht von der Dicke  $z_R - z_G$  dem Partikeltransport entgegensetzt. Den reziproken Wert von  $r_a$  nennt man Transfervgeschwindigkeit. Diese ist ein Maß für das Transportvermögen der bodennahen Luftschicht. Da die Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikeln an der Oberfläche gleich Null ist, muß eine Höhe  $z_G$  in unmittelbarer Nähe der Oberfläche als untere Integrationsgrenze gewählt werden.

Das Transfervermögen des turbulenten Regimes der Prandtl-Schicht unterscheidet sich sehr deutlich von

dem der darunterliegenden molekular-turbulenten Unterschicht. Daher ist es sinnvoll, eine Aufteilung des atmosphärischen Gesamtwiderstands  $r_a$  im Sinne der Kirchhoffschen Regel für elektrische Serienschaltungen vorzunehmen, d. h. in einen rein turbulenten Widerstand [42]

$$r_t = \int_{\delta}^{z_R} K_h^{-1} dz = \frac{1}{u_* \kappa} \left( \ln \frac{z_R - d}{\delta - d} - \Psi_h(\zeta_R, \zeta_\delta) \right) \quad (25)$$

sowie in einem molekular-turbulenten Widerstand

$$r_{mt} = \int_{z_G}^{\delta} (D_c + K_h)^{-1} dz = \frac{1}{u_*} \left( \frac{U_\delta}{u_*} + \xi \right) \quad (26)$$

mit

$$\xi = \begin{cases} \frac{u_*}{\nu} \int_{z_G}^{\delta} \frac{(Sc_c - 1) dz}{\left(1 + \frac{K_m}{\nu} Sc_c\right) \left(1 + \frac{K_m}{\nu}\right)} \\ \text{für aerodynamisch glatte Oberflächen} \\ B_c^{-1} \text{ für aerodynamisch raue Oberflächen.} \end{cases} \quad (27)$$

$\Psi_h(\zeta_R, \zeta_\delta)$  ist die dimensionslose integrale Stabilitätsfunktion für Wärme und Materie,  $U_\delta$  die Geschwindigkeit in der Höhe  $\delta$ ,  $Sc_c = \nu/D_c$  die Schmidt-Zahl und  $B_c$  die „sublayer“-Stanton-Zahl.  $\Psi_h(\zeta_R, \zeta_\delta)$  kann folgendermaßen berechnet werden [55, 41]:

$$\Psi_h(\zeta_R, \zeta_\delta) = \begin{cases} -\frac{5}{L} (z_R - \delta), & \text{falls } L > 0 \\ 0, & \text{falls } L \rightarrow \infty \\ 2 \ln \frac{1 + y_R^2}{1 + y_\delta^2}, & \text{falls } L < 0 \end{cases} \quad (28)$$

mit

$$\zeta_\delta = (\delta - d)/L, \quad \zeta_R = (z_R - d)/L \quad (29)$$

sowie

$$y_{\delta,R} = \left( \frac{\kappa(z-d)}{u_*} \frac{\partial U}{\partial z} \right)^{-1} \Big|_{z_R} = (1 - 16 \zeta_{\delta,R})^{1/4}, \quad (30)$$

den reziproken Werten der dimensionslosen Windgradienten in den Höhen  $\delta$  und  $z_R$ . Dabei ist  $\delta$  eine charakteristische Höhe im unteren, quasi-neutralen Bereich des turbulenten Regimes, die so zu bestimmen ist, daß das diabatisch-turbulente Regime und die molekular-turbulente Unterschicht separat betrachtet werden können. Als geeigneter Wert für  $\delta$  wird bei Feldexperimenten häufig die Höhe des untersten Meßniveaus gewählt, falls diese nicht kleiner ist als die für die Rauigkeitserhebungen charakteristische Höhe  $z_r$ . Eine solche Höhe ist die „äquivalente Sandrauigkeit“ nach Nikuradse [56], die ungefähr  $z_r = 30 z_0$  beträgt. Im Gegensatz dazu wird hier die Bezeichnung  $z_r = z_0 + d$  verwendet werden [55, 41].

Der Transport in der molekular-turbulenten Unterschicht wird in Gleichung (27) für aerodynamisch glatte und raue Oberflächen unterschiedlich beschrieben. Als aerodynamisch glatt gelten Oberflächen dann, wenn die charakteristische Höhe der Rauigkeitselemente kleiner ist als die Dicke der viskosen Unterschicht ( $z_r < 5 \nu/u_*$ , [57]). Der Einfluß der Rauigkeit auf die gemittelte Geschwindigkeitsverteilung und infolgedessen auf den Transport von sensibler Wärme und Materie ist hierbei nicht feststellbar [58]. Mit dem empirischen Ansatz nach Reichardt [59]

$$\frac{K_m}{\nu} = \kappa \left( z_* - z_D \tanh \frac{z_*}{z_D} \right) \quad (31)$$

kann das Integral in Gleichung (27) numerisch bestimmt werden.  $z_* = u_* z/\nu$  ist eine dimensionslose Höhe bzw. eine spezielle Reynolds-Zahl und  $z_D = 11$  eine empirische Konstante, deren Wert die Dicke der viskosen Unterschicht festlegt. Reichardts Ansatz wurde von Hasse [60] zur Bestimmung des Wärmeaustauschs und von Hasse und Liss [61] zur Beschreibung des Gasaustauschs zwischen Ozean und Atmosphäre verwendet. Weitere empirische Ansätze wurden z. B. von Deissler [62] und van Driest [63] formuliert. Alle Ansätze beschreiben das rasche Abklingen von  $K_m$  in der viskosen Unterschicht bei abnehmender Höhe durch Exponentialfunktionen. An Stelle der empirischen Beschreibung dieses Abklingens ist auch die modellmäßige Behandlung möglich. Roth [64] gelang es, auf der Grundlage einer modifizierten Heisenbergschen Formel für den spektralen Energietransfer sowie der charakteristischen Merkmale (Stationarität, horizontale Homogenität, Höheninvarianz des Impulsflusses) einer thermisch neutralen Prandtl-Schicht den Übergangsbereich zwischen viskoser und turbulenter Strömung über aerodynamisch glatten Oberflächen sowie das Vertikalprofil von  $K_m/\nu$  iterativ zu berechnen.

An Stelle des Integrals in Gleichung (27) können allerdings auch Ansätze („sublayer“-Stanton-Zahlen) der Form

$$B_c^{-1} = b Sc_c^n + c \quad (32)$$

verwendet werden, die an Hand der numerischen Lösung des Integrals bestimmt werden können. Die Abhängigkeit von der speziellen Reynolds-Zahl  $Re_* = u_* z/\nu$  ist demnach von geringer Bedeutung. Für die Konstanten  $b$ ,  $n$  und  $c$  gibt z. B. Brutsaert [12] folgende Werte an:  $b = 13,6$ ,  $n = 2/3$  und  $c = -13,5$ . Der Gültigkeitsbereich von Brutsaerts Ansatz erstreckt sich über 5 Größenordnungen [65]. Die verwendeten Konstanten gelten jedoch nur für  $\delta = 30 \nu/u_*$ . Für andere Integrationsobergrenzen ergeben sich auch andere, jedoch nur geringfügig abweichende Konstanten.

Oberflächen werden als aerodynamisch rau betrachtet, wenn die charakteristische Höhe  $z_r$  der Rauigkeitselemente größer ist als die Dicke der viskosen Unterschicht ( $z_r > 70 \nu/u_*$ , [56]). Da über rauhen Oberflächen ein beträchtlicher Teil des Impulses durch Druckkräfte an den Rauigkeitselementen übertragen wird und eine unmittelbare Wirkung der Viskosität auf die Windgeschwindigkeitsverteilung nicht zu beobachten ist [58], kann zur Berechnung des molekular-turbulenten Transports von Aerosolpartikeln der Integralausdruck in Gleichung (27) nicht verwendet werden. Der Transport von Wärme und Materie zwischen der Oberfläche und der Höhe  $\delta$  wird deshalb nur mit der „sublayer“-Stanton-Zahl  $B_c$  beschrieben. Diese Größe, die nun den Unterschied zwischen den Transferraten von Impuls und Wärme sowie Materie über rauhen Oberflächen charakterisiert und wegen der molekular-turbulenten Struktur des Vertikaltransports in der viskosen Unterschicht eine Funktion der speziellen Reynolds-Zahl  $Re_* = u_* z/\nu$  und der Schmidt-Zahl  $Sc_c$  ist, kann nach Owen und Thomson [66] sowie Chamberlain [67] folgendermaßen berechnet werden:

$$B_c^{-1} = b Re_*^m Sc_*^n + c \tag{33}$$

mit  $b = 0,52$ ,  $m = 0,45$ ,  $n = 0,8$  und  $c = 0$ .

Im Gegensatz dazu gibt Brutsaert [12] folgende Werte an:  $b = 7,3$ ,  $m = 0,25$ ,  $n = 0,5$  und  $c = -5$ . Die bei verschiedenen Windkanaluntersuchungen erzielten Ergebnisse spiegeln Brutsaerts Ansatz in ausgezeichneter Weise wider [65].

Zur Bestimmung der höheninvarianten Skalierungsgrößen  $u_*$ ,  $\Theta_*$  (Wärmeflußtemperatur) und  $q_*$  (Wasserdampf- flußkonzentration) können die Beziehungen

$$u_* = \frac{\kappa (U_R - U_\delta)}{\ln \frac{z_R - d}{\delta - d} - \Psi_m(\zeta_R, \zeta_\delta)} \tag{34}$$

$$\begin{Bmatrix} \Theta_* \\ q_* \end{Bmatrix} = \frac{1}{u_* r_t} \begin{Bmatrix} \Theta_R - \Theta_\delta \\ q_R - q_\delta \end{Bmatrix}, \tag{35}$$

verwendet werden, wobei

$$\Psi_m(\zeta_R, \zeta_\delta) = \begin{cases} \Psi_h(\zeta_R, \zeta_\delta), & \text{falls } L > 0 \\ 0, & \text{falls } L \rightarrow \infty \\ 2 \ln \frac{1 + y_R}{1 + y_\delta} + \ln \frac{1 + y_R^2}{1 + y_\delta^2}, & \text{falls } L < 0 \\ -2 \arctan \frac{y_R - y_\delta}{1 + y_R y_\delta}, & \text{falls } L < 0 \end{cases} \tag{36}$$

die dimensionslose integrale Stabilitätsfunktion für Impuls ist [55, 41]. Die Gleichungen (34)–(36) belegen, daß die Skalierungsgrößen und die davon abhängigen Parameter wie  $L$  und  $r_t$  an Hand der Profilwerte von Wind ( $U$ ), potentieller Temperatur ( $\Theta$ ) und spezifischer Feuchte ( $q$ ) in den Höhen  $\delta$  und  $z_R$  berechnet werden können. Eine elementare Berechnung dieser Größen ist jedoch nur möglich, wenn die von den Skalierungsgrößen  $u_*$ ,  $\Theta_*$  und  $q_*$  abhängige Stabilitätslänge aus den Gleichungen eliminiert wird.

Im Falle stabil geschichteter Luft läßt sich  $L$  unter Berücksichtigung der Definitionsbeziehung (10) in elementarer Weise ersetzen. Für die Skalierungsgrößen ergeben sich dabei folgende Gleichungen [9]:

$$\begin{Bmatrix} u_* \\ \Theta_* \\ q_* \end{Bmatrix} = \beta \begin{Bmatrix} U_R - U_\delta \\ \Theta_R - \Theta_\delta \\ q_R - q_\delta \end{Bmatrix}, \tag{37}$$

mit

$$\beta = \frac{\kappa (1 - 5 Ri_b)}{\ln \frac{z_R - d}{\delta - d}} \tag{38}$$

und

$$Ri_b = \frac{g}{\Theta_m} \frac{\Theta_R - \Theta_\delta + 0,608 \Theta_m (q_R - q_\delta)}{(U_R - U_\delta)^2} (z_R - \delta), \tag{39}$$

der sogenannten „bulk“-Richardson-Zahl. Eine solche Möglichkeit existiert allerdings nicht für instabil geschichtete Luft. In diesem Falle können die Skalierungsgrößen und die davon abhängigen Parameter nur iterativ berechnet werden [68].

Um das Integral auf der rechten Seite der Gleichung (24) elementar lösen zu können, muß zumindest die Abhängigkeit der Sedimentationsgeschwindigkeit von der Partikelkonzentration bekannt sein. Nach Gleichung (20) bzw. (22) hängt die Sedimentationsgeschwindigkeit des Partikelensembles zwar sehr stark von der Struktur der Größenverteilungsfunktion (insbesondere vom Beitrag der Riesenteilchen), charakterisiert durch  $R_b$ ,  $\sigma_i$  und  $C_b$ , und selbstverständlich von der Dichte  $\rho_{p,i}$  der Aerosolpartikeln ab. Da sie jedoch weder von der Partikelzahl  $N$  noch von der Anzahl  $N_i$  der Partikeln der  $i$ -ten Aerosolkomponente abhängig ist, darf sie als unabhängig von der Konzentration betrachtet werden. Das Integral auf der rechten Seite von Gleichung (24) läßt sich folglich elementar lösen. Man erhält:

$$F_c = - \frac{v_T c_R}{1 - \exp(-v_T r_a)} \left( 1 - \frac{c_G}{c_R} \exp(-v_T r_a) \right). \tag{40}$$

Mit Hilfe der de L'Hospitalischen Regel läßt sich zeigen, daß diese Formel für  $v_T \rightarrow 0$  in die Beziehung

$$F_c = - \frac{1}{r_a} (c_R - c_G) \tag{41}$$

übergeht, die im allgemeinen zur Berechnung des Vertikaltransports von reaktionsträgen Spurengasen und kleinen Aerosolpartikeln herangezogen wird. In Gleichung (40) bestimmt der Ausdruck  $\mu_p = c_G/c_R \exp(-v_T r_a)$  die Richtung des Partikelflusses, d. h.

$$F_c \begin{cases} < 0, & \text{falls } \mu_p < 1 & \text{(Deposition)} \\ = 0, & \text{falls } \mu_p = 1 & \text{(Kompensation)} \\ > 0, & \text{falls } \mu_p > 1 & \text{(Resuspension)}. \end{cases} \tag{42}$$

Für  $\mu_p \ll 1$  ( $c_G \ll c_R \exp(v_T r_a)$ ) ergibt sich die von Sehmel [18] für monodisperses Aerosol hergeleitete Beziehung

$$F_c = - \frac{v_T c_R}{1 - \exp(-v_T r_a)}. \tag{43}$$

Für die Depositionsgeschwindigkeit im Referenzniveau  $z_R$  erhält man:

$$v_d = \frac{v_T}{1 - \exp(-v_T r_a)} \tag{44}$$

bzw.

$$v_d = \begin{cases} r_a^{-1}, & \text{falls } v_T \rightarrow 0 \\ v_T, & \text{falls } c_G/c_R \approx 1. \end{cases} \quad (45)$$

Für  $c_G/c_R = 1$  gilt grundsätzlich:  $v_d = v_T$ .

Der Kompensationszustand ( $\mu_p = 1$ ) ist dann erreicht, wenn  $c_G = c_R \exp(v_T r_a)$  ist. In diesem Fall wird der Sedimentationsfluß durch einen aufwärts gerichteten diffusiven Transport kompensiert.

Zur Beschreibung der Resuspension ( $\mu_p > 1$ ) werden sowohl der sogenannte Resuspensionsfaktor

$$f_c = \frac{c}{M_c} \quad (46)$$

als auch die sogenannte Resuspensionsrate

$$\Lambda_c = \frac{R_c}{M_c} \quad (47)$$

verwendet (z. B. [33]).  $M_c$  ist die Oberflächenkontamination (in  $\mu\text{g}/\text{m}^2$ ) und  $R_c$  der Resuspensionsfluß, der im Falle von  $\mu_p > 1$  ( $c_G > c_R \exp(v_T r_a)$ ) gleich dem Partikelfluß  $F_c$  ist. Ebenso wie  $c$  und  $R_c$  ist  $f_c$  im allgemeinen höhenabhängig. Faßt man die beiden Definitionsbeziehungen zusammen, so erhält man die sogenannte Resuspensionsgeschwindigkeit

$$v_r = \frac{R_c}{c} = \frac{\Lambda_c}{f_c}. \quad (48)$$

Für  $\mu_p > 1$  ergibt sich

$$F_c = \frac{v_T c_R}{\left(1 + \frac{f_{c,G}}{\Lambda_c}\right) \exp(-v_T r_a) - 1}, \quad (49)$$

wobei  $f_{c,G}$  der Resuspensionsfaktor in der Höhe  $z_G$  ist. Für die Resuspensionsgeschwindigkeit im Referenzniveau  $z_R$  erhält man

$$v_r = \frac{\Lambda_c}{f_{c,R}} = \frac{v_T}{\left(1 + \frac{f_{c,G}}{\Lambda_c}\right) \exp(-v_T r_a) - 1}. \quad (50)$$

Da der Partikelfluß sich allein aus den Meßwerten des turbulenten Regimes bestimmen läßt, kann der Resuspensionsfaktor in der Höhe  $z_G$  unter Berücksichtigung des aerodynamischen Gesamtwiderstands

$$r_a = \frac{1}{u_*} \left( \frac{U_\delta}{u_*} + \xi + \frac{1}{\kappa} \left( \ln \frac{z_R - d}{\delta - d} - \Psi_h(\zeta_R, \zeta_\delta) \right) \right) \quad (51)$$

folgendermaßen abgeschätzt werden:

$$f_{c,G} = \frac{F_c (1 - \exp(-v_T r_a)) + v_T c_R}{M_c v_T \exp(-v_T r_a)}. \quad (52)$$

Für  $v_T \rightarrow 0$  geht diese Gleichung über in

$$f_{c,G} = \frac{1}{M_c} (F_c r_a + c_R). \quad (53)$$

Bei der Herleitung von Gleichung (24) wurde angenommen, daß der Partikelfluß und die Sedimentationsgeschwindigkeit in der bodennahen Luftschicht als höheninvariant betrachtet werden dürfen. Die Annahme eines höheninvarianten Partikelflusses läßt sich jedoch nur dann rechtfertigen, wenn stationäre Verhältnisse und horizontal-homogene Konzentrationen vorliegen und Massenumwandlungseffekte keine Rolle spielen. Die Annahme einer höheninvarianten Sedimentationsgeschwindigkeit ist nur dann sinnvoll, wenn die Struktur der Größenverteilung sich nicht ändert. Sicherlich ist diese Bedingung unter den zur Höheninvarianz des Partikelflusses beitragenden Umständen am ehesten erfüllt.

Es ist bekannt, daß die Sedimentationsgeschwindigkeit für relative Feuchten von mehr als 80 % sehr stark mit der relativen Feuchte ansteigt [69, 70]. Dieser Anstieg ist auf das rasche Anwachsen der Aerosolteilchen als Folge der erhöhten Wasserdampfadsorption zurückzuführen. Damit ist nicht nur eine merkliche Änderung der Konzentration infolge der Massenzunahme, sondern auch eine beträchtliche Verschiebung der Größenverteilungsstruktur zu größeren Partikelradien hin verbunden. Da über Wasseroberflächen die relative Feuchte mit abnehmender Höhe rasch auf Werte von mehr als 80 % ansteigt und in unmittelbarer Nähe der Oberfläche sogar Werte von nahezu 100 % annimmt, muß man die Annahme der Höheninvarianz des Partikelflusses und der Sedimentationsgeschwindigkeit als unrealistisch einordnen (siehe auch [71]). In diesem Falle ist die numerische Integration von Gleichung (1) unumgänglich.

### 3. Testrechnungen

Obwohl zur Berechnung von Partikelflüssen die Vertikalprofile von Wind, potentieller Temperatur, spezifischer Feuchte, Partikelkonzentrationen und Größenverteilungen erforderlich sind, existieren z. Zt. nur wenige Datensätze, die es ermöglichen, numerische Verfahren zu testen. Ergebnisse von Modellrechnungen zum Vertikaltransport von Ammonium-Partikeln sind in den Abbildungen 4 und 5 dargestellt. Die Berechnungen wurden mit einem nichtlinearen Ausgleichsverfahren, das auf dem zuvor beschriebenen Formalismus beruht [68], an Hand von Meßdaten des GREIV I-Experiments (GREIV = Grenzschicht instrumentelle Vermessung) durchgeführt. Dieses Experiment fand im April 1974 in der Nähe von Meppen/Emsland (Norddeutschland) statt. Das Meßgebiet ist eben: Während der Meßphase war es mit ca. 25 cm hoher Wintergerste und mit 50–75 cm hohem Raps bedeckt [38]. Zur Berechnung

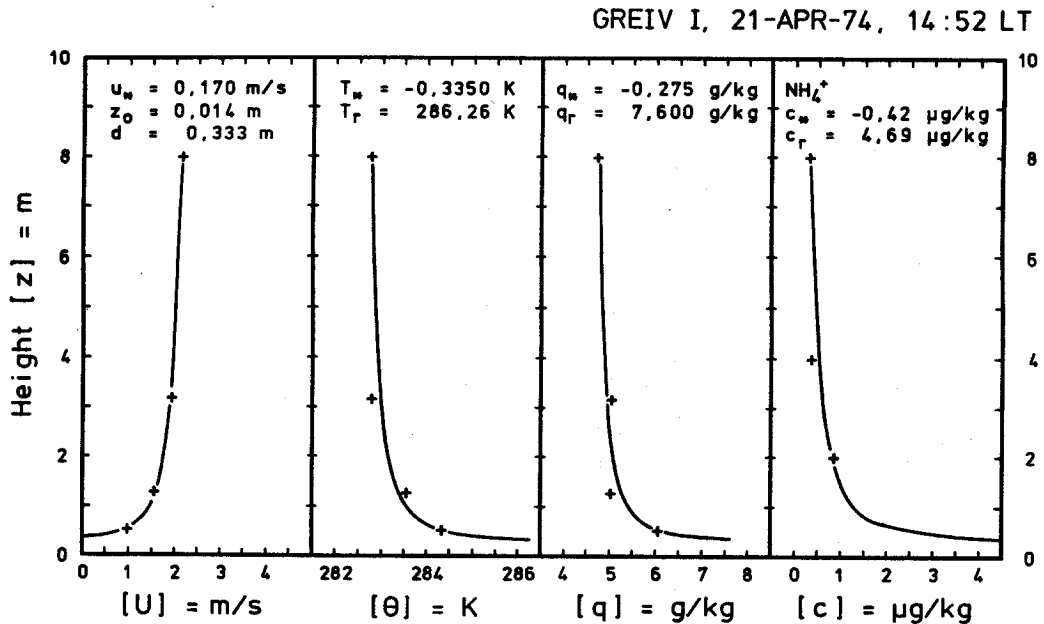


Abb. 4. Vertikalprofile von Wind ( $U$ ), potentieller Temperatur ( $\Theta$ ) und spezifischer Feuchte ( $q$ ) sowie  $\text{NH}_4^+$  ( $c$ ) (berechnet mit  $F_c = \text{const}$ ) bei instabiler Luftschichtung ( $\Theta_s < 0$ ). Die Kreuze repräsentieren die beobachteten Werte und die durchgezogenen Linien die berechneten Ausgleichsprofile.

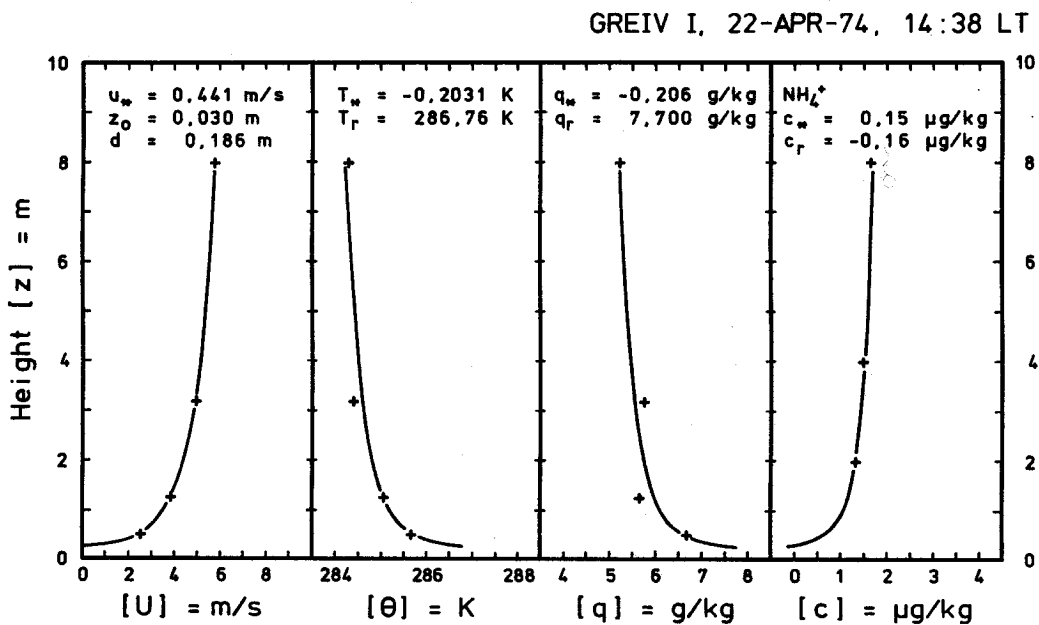


Abb. 5. Vertikalprofile von Wind ( $U$ ), potentieller Temperatur ( $\Theta$ ) und spezifischer Feuchte ( $q$ ) sowie  $\text{NH}_4^+$  ( $c$ ) (berechnet mit  $F_c = \text{const}$ ) bei instabiler Luftschichtung ( $\Theta_s < 0$ ). Die Kreuze repräsentieren die beobachteten Werte und die durchgezogenen Linien die berechneten Ausgleichsprofile.

der turbulenten Flüsse von Impuls, Wärme und Wasserdampf wurden die 30-min-Mittel von Wind, Trocken- und Feuchttemperatur verwendet, die von der Arbeitsgruppe der Universität Kiel in den Höhen von 50, 126, 318 und 800 cm simultan gemessen wurden. Die Partikelflüsse wurden an Hand der von der Arbeitsgruppe der Universität Frankfurt in 200, 400, 800 und 1600 cm Höhe gemessenen  $\text{NH}_4^+$ -Konzentrationen (zur Probenahme wurden jeweils 2

Stunden benötigt; Lenhard, persönliche Mitteilungen) berechnet, wobei allerdings Sedimentationseffekte vernachlässigt wurden, da einerseits die Größenverteilung der  $\text{NH}_4^+$ -Partikeln nicht bekannt, aber andererseits ihr Einfluß bei relativen Feuchten von weniger als 80 % auch sehr gering ist. Die gleichzeitig gemessenen  $\text{SO}_2$ - und  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen wurden ebenfalls ausgewertet (siehe Tab. 3, [55]).

Tabelle 3. Berechnete Werte der Grenzschichtparameter  $z_0$ ,  $d$ ,  $u_*$ ,  $\Theta_*$ ,  $q_*$ ,  $c_*$  und  $v_{d,1m}$  [55] sowie den „Streuungen“  $s_U$ ,  $s_Q$ ,  $s_q$  und  $s_c$ . Die Resultate basieren auf den Meßdaten des GREIV I-Experiments [38].  $s_x$  ist folgendermaßen definiert:

$$s_x = \left\{ \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N (x_{M,j} - x_{C,j})^2 \right\}^{1/2}$$

$x_{M,j}$  ist der Meßwert und  $x_{C,j}$  der zugehörige berechnete Wert.

Tag	Zeit	$z_0$ [cm]	$d$ [cm]	$u_*$ [cm/s]	$\Theta_*$ [K]	$q_*$ [g/kg]	$s_U$ [cm/s]	$s_Q$ [K]	$s_q$ [g/kg]	$c_*$ [µg/kg]	$s_c$ [µg/kg]	$v_{d,1m}$ [mm/s]	$c_*$ [µg/kg]	$s_c$ [µg/kg]	$v_{d,1m}$ [mm/s]
21.4.74		Probennahmeintervall: 11:00—13:00 MEZ													
	11:45	2,1	21,1	20,7	-0,1719	-0,140	3,6	0,07	0,11						
	12:16	3,4	19,2	21,9	-0,2218	-0,183	2,8	0,08	0,11	-0,821	1,51	-30,5	-0,208	1,21	-19,1
	12:45	2,4	22,1	26,6	-0,1952	-0,161	3,8	0,08	0,11						
21.4.74		Probennahmeintervall: 14:00—16:00 MEZ													
	14:16	2,9	25,9	20,9	-0,3539	-0,271	4,4	0,15	0,12						
	14:52	1,4	33,3	17,0	-0,3358	-0,275	3,4	0,15	0,13	-0,061	0,33	-4,6	0,525	0,47	—
	15:16	1,4	32,7	18,2	-0,1953	-0,165	4,9	0,12	0,12						
	15:42	2,6	20,3	25,8	-0,2292	-0,149	5,7	0,14	0,18						
22.4.74		Probennahmeintervall: 14:00—16:00 MEZ													
	14:14	2,2	22,5	40,7	-0,2175	-0,223	3,2	0,14	0,29						
	14:38	3,0	18,6	44,1	-0,2035	-0,206	3,1	0,10	0,23	—	—	—	-0,716	1,60	-55,0
	15:13	1,8	23,9	42,5	-0,1574	-0,171	4,5	0,15	0,23						
	15:45	1,6	25,6	43,0	-0,1179	-0,136	5,5	0,15	0,21						

Die in den Abbildungen 4 und 5 dargestellten Ergebnisse veranschaulichen, daß die beobachteten Konzentrationswerte durch die berechneten Ausgleichsprofile gut repräsentiert werden. Für den 21. April 1974 ergab sich bei einer „Streuung“ von  $s_c = 0,12 \mu\text{g/kg}$  (siehe hierzu Tab. 3) ein aufwärts gerichteter Fluß von  $F_c = 0,088 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  und für den 22. April 1974 bei einer „Streuung“ von  $s_c = 0,025 \mu\text{g/kg}$  ein Depositionsfluß von  $F_c = -0,080 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  (was einer außerordentlich hohen Depositionsgeschwindigkeit in  $z = 1 \text{ m}$  Höhe von  $v_{d,1m} = 6,4 \text{ cm s}^{-1}$  entspricht). Aufwärts gerichtete Partikelflüsse wurden sowohl von Garland und Cox [16] als auch von Wesely und Hicks [5] beobachtet. Da beim GREIV I-Experiment weder die Kontamination des Bodens und der Vegetation mit  $\text{NH}_4^+$ -Partikeln untersucht noch Konzentrationsmessungen in unmittelbarer Oberflächennähe durchgeführt wurden, sollte der dargestellte Fall des aufwärts gerichteten Partikelflusses nicht unbedingt als Beispiel für die Resuspension von  $\text{NH}_4^+$ -Partikeln interpretiert werden. Bemerkenswert ist allerdings, daß die für die gleichen Zeitintervalle berechneten  $\text{NH}_3$ - und  $\text{NH}_4^+$ -Flüsse jeweils entgegengesetzt gerichtet sind, was sich vermutlich auf die Umwandlung von  $\text{NH}_3$  in  $\text{NH}_4^+$  zurückführen läßt. Weiterhin ist bemerkenswert, daß der Beitrag der thermisch bewirkten Turbulenz im Vergleich zum Beitrag der mechanisch erzeugten Turbulenz am 21. April 1974 erheblich größer war als am darauffolgenden Tag.

#### 4. Schlußbemerkungen

Die zuvor diskutierten Testergebnisse belegen, daß die berechneten Vertikalprofile die gemessenen  $\text{NH}_4^+$ -Partikelkonzentrationen gut repräsentieren. Die modellmäßige Be-

stimmung der trockenen Deposition und Resuspension polydisperser Aerosolpartikeln in der bodennahen Luftschicht liefert anscheinend qualitativ und quantitativ vernünftige Ergebnisse. Eine Verifikation der gesamten Modellphysik ist allerdings im Interesse der Erforschung von Schädigungen unumgänglich. Die Modellverifikation setzt allerdings voraus, daß auch direkt gemessene Partikelflüsse zum Vergleich herangezogen werden können. Solche Flußmessungen wurden jedoch im Rahmen des GREIV I-Experiments nicht durchgeführt. Ein Vergleich zwischen direkt bestimmten und berechneten Partikelflüssen konnte deshalb nicht vorgenommen werden. Mit zukünftigen Feldexperimenten ist daher die dringliche Erwartung verknüpft, daß neben den Vertikalprofilen von Windgeschwindigkeit, Temperatur, Feuchte und Partikelkonzentration sowie der Größenverteilung auch die Depositions- und Resuspensionsflüsse gemessen werden.

#### Danksagung

Für die Förderung der Untersuchungen zur Partikeldeposition möchte ich der Deutschen Forschungsgemeinschaft (SFB 73 „Atmosphärische Spurenstoffe“ — Teilprojekt F9) sowie der Fraunhofer-Gesellschaft zur Förderung der angewandten Wissenschaften e. V. meinen Dank aussprechen. Herrn Prof. Dr. G. Hänel, Herrn Dr. G. d'Almeida und Herrn Dr. E. Schaller danke ich für die wertvollen Anregungen und Hinweise sowie sachliche Kritik.

#### Literaturverzeichnis

- [1] Davidson, C. I., Lindberg, S. E., Schmidt, S. A., Cartwright, L. G., Landis, L. R.: Dry deposition of sulfate onto surrogate surfaces. — J. Geophys. Res. 90, 2123—2130 (1985).
- [2] Perseke, C.: Die trockene und feuchte Deposition säurebil-

- dender atmosphärischer Spurenstoffe. — Ber. Inst. f. Meteor. u. Geophys. d. J.-W.-Goethe-Univ. Frankfurt/M., Nr. 48. Eigenverlag d. Inst. (1982).
- [3] Dasch, J. M., Cadle, S. H.: Wet and dry deposition monitoring in south-eastern Michigan. — *Atmos. Environ.* 19, 789—796 (1985).
- [4] Feely, H. W., Bogen, D. C., Nagourney, S. J., Torquato, C. C.: Rates of dry deposition determined using wet/dry collectors. — *J. Geophys. Res.* 90, 2161—2165 (1985).
- [5] Wesely, M. L., Hicks, B. B.: Dry deposition and emission of small particles at the surface of the Earth. — Fourth Symposium of Turbulence, Diffusion and Air Pollution, 15—18 Jan. 1979, Reno, Nevada (1979).
- [6] Katen, P. C., Hubbe, J. M.: An evaluation of optical particle counter measurements of the dry deposition of atmospheric aerosol particles. — *J. Geophys. Res.* 90, 2145—2160 (1985).
- [7] Wesely, M. L., Cook, D. R., Hart, R. L., Speer, E. R.: Measurements and parameterization of particulate sulfur dry deposition over grass. — *J. Geophys. Res.* 90, 2131—2143 (1985).
- [8] Atkins, D. H. F., Garland J. A.: The measurement of deposition velocities for SO<sub>2</sub> and particulate material by the gradient method. — WMO Special Environment Report No. 3, Observation and Measurement of Atmospheric Pollutants, WMO 368, Genf, 579—594 (1974).
- [9] Businger, J. A.: Turbulent transfer in the atmospheric surface layer. — In: Haugen, D. A. (Ed.), Workshop on Micrometeorology. — Amer. Meteor. Soc., Boston, 67—100 (1973).
- [10] Fowler, D.: Dry deposition of SO<sub>2</sub> on agricultural crops. — *Atmos. Environ.* 12, 369—373 (1978).
- [11] Kramm, G., Herbert, F.: Bestimmung lokaler Transport- und Depositionsraten in der ABL. — *Ann. Meteorol. (NF)* 19, 204—206 (1982).
- [12] Brutsaert, H. W.: Exchange processes at the earth-atmosphere interface. — In: Plate, E. (Ed.), Engineering Meteorology. — Elsevier, New York, 319—369 (1982).
- [13] Businger, J. A.: Evaluation of the accuracy with which dry deposition can be measured with current micrometeorological techniques. — *J. Appl. Meteor.* 25, 1100—1124 (1986).
- [14] Everett, R. G., Hicks, B. B., Berg, W. W., Wichester, J. W.: An analysis of particulate sulfur and lead gradient data collected at Argonne National Laboratory. — *Atmos. Environ.* 13, 931—934 (1979).
- [15] Sievering, H.: Profile measurements of particle dry deposition velocity at an air-land interface. — *Atmos. Environ.* 16, 301—306 (1982).
- [16] Garland, J. A., Cox, L. C.: Deposition of small particles to grass. — *Atmos. Environ.* 16, 2699—2702 (1982).
- [17] Nicholson, K. W., Davies, T. D.: Field measurements of the dry deposition of particulate sulphate. — *Atmos. Environ.* 21, 1561—1571 (1987).
- [18] Sehmel, G. A.: Particle eddy diffusivities and deposition velocities for isothermal flow and smooth surfaces. — *J. Aerosol Sci.* 4, 125—138 (1973).
- [19] Sehmel, G. A., Hodgson, W. H.: A model for predicting dry deposition of particles and gases to environmental surfaces. — *AIChE Symp. Ser.* 76, Nr. 196, 218—230 (1980).
- [20] Slinn, J. A., Slinn, W. G. N.: Predictions for particle deposition on natural waters. — *Atmos. Environ.* 14, 1013—1016 (1980).
- [21] Wood, N. B.: A simple method for the calculation of turbulent deposition to smooth and rough surfaces. — *J. Aerosol Sci.* 12, 275—290 (1981).
- [22] Williams, R. M.: A model for the dry deposition of particles to natural water surfaces. — *Atmos. Environ.* 16, 1933—1938 (1982).
- [23] Georgii, H.-W.: Chemische Reaktionen von Gasen und Aerosolen in Regen- und Wolkentropfen und ihre feuchte und trockene Deposition. — In: Becker, K.-H., Löbel, J. (Edn.), *Atmosphärische Spurenstoffe und ihr physikalisch-chemisches Verhalten*. — Springer, Berlin/Heidelberg/New York/Tokyo, 129—152 (1985).
- [24] Chamberlain, A. C.: Deposition of lycopodium spores and other small particles to rough surfaces. — *Proc. R. Soc. A* 296, 45—70 (1967).
- [25] Clough, W. S.: Transport of particles to surfaces. — *J. Aerosol Sci.* 4, 227—234 (1973).
- [26] Nicholson, K. W.: The dry deposition of small particles: A review of experimental measurements. — *Atmos. Environ.* 22, 2653—2666 (1988).
- [27] Spurny, K. R.: Grundlagen der Aerosolphysik und Aerosolchemie. — In: Becker, K.-H., Löbel, J. (Edn.), *Atmosphärische Spurenstoffe und ihr physikalisch-chemisches Verhalten*. — Springer, Berlin/Heidelberg/New York/Tokyo, 92—128 (1985).
- [28] Chamberlain, A. C.: Deposition and resuspension. — In: Pruppacher, H. R., Semonin, R. G., Slinn, W. G. N. (Eds.), *Precipitation scavenging, dry deposition and resuspension*. — Elsevier, New York, 731—751 (1983).
- [29] Bagnold, R. A.: *The physics of blown sand and desert dunes*. — Methuen & Co., London (1941).
- [30] Chepil, W. S.: Dynamics of wind erosion. — I. Nature of movement of soil by wind. — *Soil Sci.* 60, 305—320 (1945).
- [31] Chepil, W. S.: Dynamics of wind erosion. — II. Initiation soil movement. — *Soil Sci.* 60, 397—411 (1945).
- [32] Perkins, R. W., Thomas, C. W.: Worldwide fallout. — In: Hanson, W. C. (Ed.), *Transuranic elements in the environment*. — U.S. Department of Energy, 52—82 (1980).
- [33] Healy, J. W.: Review of resuspension models. — In: Hanson, W. C. (Ed.), *Transuranic elements in the environment*. — U.S. Department of Energy, 209—235 (1980).
- [34] Nicholson, K. W.: A review of particle resuspension. — *Atmos. Environ.* 22, 2639—2651 (1988).
- [35] Sehmel, G. A.: Transuranic and tracer simulant resuspension. — In: Hanson, W. C. (Ed.), *Transuranic elements in the environment*. — U.S. Department of Energy, 236—287 (1980).
- [36] Langer, G.: Activity, size, and flux of resuspended particles from Rocky Flats soil. — In: Pruppacher, H. R., Semonin, R. G., Slinn, W. G. N. (Eds.), *Precipitation scavenging, dry deposition and resuspension*. — Elsevier, New York, 1161—1175 (1983).
- [37] Garland, J. A.: Some recent studies of the resuspension of deposited material from soil and grass. — In: Pruppacher, H. R., Semonin, R. G., Slinn, W. G. N. (Eds.), *Precipitation scavenging, dry deposition and resuspension*. — Elsevier, New York, 1087—1097 (1983).
- [38] Beyer, R., Roth, R.: GREIV I 1974-Meßdaten. — Ber. d. Inst. f. Meteor. u. Klimat. d. TU Hannover 16 (1976).
- [39] Kramm, G.: Modellrechnungen zur Bestimmung der trockenen Deposition atmosphärischer Spurenstoffe. — IABG-Bericht B-TD 9003/02 (1986).
- [40] Haugen, D. A., Kaimal, J. C., Bradley, E. F.: An experimental study of Reynolds stress and heat flux in the atmospheric surface layer. — *Quart. J. R. Met. Soc.* 97, 168—180 (1971).
- [41] Kramm, G.: A numerical method for determining the dry deposition of atmospheric trace gases. — *Bound. Lay. Meteorol.* 48, 157—175 (1989).
- [42] Kramm, G.: Vertikaltransport von Spurenstoffen in der bodennahen Luftschicht über ebenen Oberflächen. — Löbel, J., Paduch, M. (Edn.), *Wechselwirkung zwischen Atmosphäre und technischen Oberflächen*. — VDI-Bericht Nr. 721, VDI-Verlag, Düsseldorf, 179—235 (1989).
- [43] Swinbank, W. C., Dyer, A. J.: An experimental study in micro-meteorology. *Quart. J. R. Met. Soc.* 93, 494—500 (1967).
- [44] Högestrom, U.: Turbulent water vapour transfer at different stability conditions. — *Phys. Fluids* 10 (Suppl.), 247—254 (1967).
- [45] Dyer, A. J., Hicks, B. B.: Flux-gradient relationships in the

- constant flux layer. — *Quart. J. R. Met. Soc.* 96, 715—721 (1970).
- [46] Pruppacher, H. R., Klett, J. D.: *Microphysics of clouds and precipitation*. — D. Reidel, Dordrecht/Boston/Lancaster/Tokyo (1980).
- [47] Webb, E. K.: Profile relationships: The log-linear range and extension to strong stability. — *Quart. J. R. Met. Soc.* 96, 67—90 (1970).
- [48] Monin, A. S., Obuchow, A. M.: Fundamentale Gesetzmäßigkeiten der turbulenten Vermischung in der bodennahen Schicht der Atmosphäre. — In: Goering, H. (Ed.), *Sammelband zur statistischen Theorie der Turbulenz*. — Akademie-Verlag, Berlin, 199—226 (1958).
- [49] Junge, C. E.: *Air chemistry and radioactivity*. — Academic Press, New York (1963).
- [50] Deirmendjian, D.: Scattering and polarization properties of water clouds and hazes in the visible and infrared. — *Appl. Optics* 3, 187—196 (1964).
- [51] Jaenicke, R.: *Aerosol physics and chemistry*. — In: Landolt-Börnstein, Neue Serie, Gruppe V, 46: *Physical and chemical properties of the air*. — Springer, Berlin/Heidelberg/New York/Tokyo (1985).
- [52] Deepak, A., Gerber, H. E. (Eds.): Report of WMO(CAS)/Radiation Commission of IAMAP meeting of experts on aerosols and their climatic effects (Williamsburg, Virginia, 28—30 March, 1983). — WCP-55 (1983).
- [54] Chamberlain, A. C.: Aspects of travel and deposition of aerosol and vapour clouds. — A.E.R.E.-Report HP/R 1261 (RP14). Harwell, Berkshire (1961).
- [55] Kramm, G., Hebert, F.: Ein numerisches Modell zur Deposition von Schadstoffen in der bodennahen Luftschicht. — In: Reuter, H. (Ed.), *Probleme der Umwelt- und Medizinmeteorologie im Gebirge (Symposium Rauris/Österreich, 23.—25. Sept. 1983)*. — Zentralanst. f. Meteorol. u. Geodynamik, Wien, Nr. 288, 22—38 (1984).
- [56] Nikuradse, J.: Strömungsgesetze in rauhen Rohren. — *Forsch. Arb. Ing.-Wes.* 361 (1933).
- [57] Nikuradse, J.: Gesetzmäßigkeit der turbulenten Strömung in glatten Rohren. — *Forsch. Arb. Ing.-Wes.* 356 (1932).
- [58] Rotta, J. C.: *Turbulente Strömungen*. — Teubner, Stuttgart (1972).
- [59] Reichardt, H.: Vollständige Darstellung der turbulenten Geschwindigkeitsverteilung in glatten Rohren. — *Z. angew. Math. Mech.* 31, 208—219 (1951).
- [60] Hasse, L.: The sea surface temperature deviation and the heat flow at the sea-air interface. — *Bound. Lay. Meteorol.* 1, 368—379 (1971).
- [61] Hasse, L., Liss, P. S.: Gas exchange across the air-sea interface. — *Tellus* 32, 470—481 (1980).
- [62] Deissler, R. G.: Analysis of turbulent heat transfer, mass transfer and friction in smooth tubes at high Prandtl and Schmidt numbers. — NACA, TR 1210 (1955).
- [63] Driest, E. R. van: On turbulent flow near a wall. *J. Aeronaut.* — *Sci.* 23, 1007 (1956).
- [64] Roth, R.: Modelle für das Windprofil über einer rauhen und einer glatten Oberfläche. — *Contr. Atm. Phys.* 45, 277—304 (1972).
- [65] Chamberlain, A. C., Garland, J. A., Wells, A. C.: Transport of gases and particles to surfaces with widely spaced roughness elements. — *Bound. Lay. Meteorol.* 29, 343—360 (1984).
- [66] Owen, P. R., Thomson, W. R.: Heat transfer across rough surfaces. — *J. Fluid Mech.* 15, 321—334 (1963).
- [67] Chamberlain, A. C.: Transport of gases to and from surfaces with bluff and wave-like roughness elements. — *Quart. J. R. Met. Soc.* 94, 318—332 (1968).
- [68] Kramm, G.: The estimation of the surface layer parameters from wind velocity, temperature and humidity profiles by least squares methods. — *Bound. Lay. Meteorol.* 48, 315—327 (1989).
- [69] Hänel, G.: Influence of relative humidity on aerosol deposition by sedimentation. — *Atmos. Environ.* 16, 2703—2706 (1982).
- [70] Hänel, G.: *Angewandte Aerosolforschung für Wolkenphysik, Klimatologie und Ökologie*. — In: Jaenicke, R. (Ed.), *Atmosphärische Spurenstoffe*. — VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim, 305—320 (1987).
- [71] Fitzjarrald, D. R., Lenschow, D. H.: Mean concentration and flux profiles for chemically reactive species in the atmospheric surface layer. — *Atmos. Environ.* 17, 2505—2512 (1983).
- [72] Sehmel, G. A.: Particle and gas dry deposition: A review. — *Atmos. Environ.* 14, 983—1011 (1980).
- [73] Slinn, W. G. N.: Dry deposition and resuspension of aerosol particles — a new look at some old problems. — In: *Atmospheric surface exchange of particulate and gaseous pollutants (Proceed, Symp. Richland, WA, 4.—6. Sept. 1974, ERDA Symposium Series CONF 740921, 1—40 (1976)*.
- [74] Garland, J. A.: Dry and wet removal of sulphur from the atmosphere. — *Atmos. Environ.* 12, 349—362 (1978).
- [75] Wesely, M. L., Hicks, B. B., Dannevik, W. P., Frisella, S., Husar, R. B.: An eddy-correlation measurement of particulate deposition from the atmosphere. — *Atmos. Environ.* 11, 561—563 (1977).
- [76] Sheih, C. M., Wesely, M. L., Hicks, B. B.: Estimated dry deposition velocities of sulfur over the eastern United States and surrounding regions. — *Atmos. Environ.* 13, 1361—1368 (1979).
- [77] Davies, T. D., Nicholson, K. W.: Deposition of sulphur dioxide and sulphate at a rural site in eastern England. — In: Georgii, H.-W., Pankrath, D. (Edn.), *Deposition of atmospheric pollutants*. — D. Reidel, Dordrecht/Boston/Lancaster/Tokyo, 31—42 (1982).
- [78] Garland, J. A.: Field measurements of the dry deposition of small particles to grass. — In: Georgii, H.-W., Pankrath, D. (Edn.), *Deposition of atmospheric pollutants*. — D. Reidel, Dordrecht/Boston/Lancaster/Tokyo, 9—16 (1982).
- [79] Little, P., Wiffen, R. D.: Emission and deposition of lead from motor exhausts, II Airborne concentration, particle size and deposition of lead near motorways (1978).
- [80] OECD-LRTAP: The OECD-programme on long range transport of air pollutants, measurements and findings. — Paris (1977).
- [81] Höfken, K. D., Georgii, H.-W., Gravenhorst, G.: Untersuchungen über die Deposition atmosphärischer Spurenstoffe an Buchen- und Fichtenwald. — *Ber. Inst. f. Meteor. u. Geophys. d. J.-W.-Goethe-Universität Frankfurt/M.* Nr. 46, Eigenverlag d. Inst. (1981).
- [82] Cawse, P. A.: A survey of atmospheric trace elements in the UK (1972—1973). — A.E.R.E.-Rep. — R 7669. Harwell, Berkshire (1974).
- [83] Koch, C.: Experimentelle Untersuchungen der trockenen und nassen Ablagerung der atmosphärischen Schwefelverbindungen SO<sub>2</sub> und Sulfat. — Diplomarbeit am Inst. f. Meteor. u. Geophys. d. J.-W.-Goethe-Universität Frankfurt/M.
- [84] Georgii, H.-W., Perseke, C., Rohbock, E.: Feststellung der Deposition von sauren und langzeitwirksamen Luftverunreinigungen aus Belastungsgebieten. — *Abschlußber. z. Forschungsprojekt 104 02 600 im Auftrag d. Umweltbundesamtes* (1982).
- [85] Rahn, K.: Chemical composition of the atmospheric aerosol. *Techn. Rep., Graduate School of Oceanography, Univ. of Rhode Island* (1976).

Gerhard Kramm  
Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung  
Kreuzeckbahnstraße 19  
D-8100 Garmisch-Partenkirchen

Eingereicht: 10. 4. 1990, angenommen: 13. 10. 1990