



Doctoral Thesis

Nitrogen oxides and ozone measurements at the tropopause and attributions to convection and lightning

Author(s):

Jeker, Dominique Paul

Publication Date:

1999

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-003896903> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss. ETH No. 13423

**NITROGEN OXIDES AND OZONE MEASUREMENTS
AT THE TROPOPAUSE AND
ATTRIBUTIONS TO CONVECTION AND LIGHTNING**

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY (ETH)
ZÜRICH, SWITZERLAND

for the degree of
DOCTOR OF NATURAL SCIENCES

presented by
DOMINIQUE PAUL JEKER
Dipl. sci. nat. ETH
born October 12, 1972
citizen of Mümliswil-Ramiswil (SO),
Switzerland

Accepted on the recommendation of
Prof. Dr. T. Peter, ETH Zürich, examiner
Dr. A. M. Thompson, NASA Goddard Space Flight Center, co-examiner
Dr. J. Staehelin, ETH Zürich, co-examiner

Zürich, 1999

ABSTRACT

NO_x (NO and NO_2) and ozone mixing ratios were measured on 98 flights during August to November 1997 in the framework of the projects POLINAT 2 (Pollution in the North Atlantic Flight Corridor) and SONEX (SASS Ozone and Nitrogen EXperiment). The fully automated measurement system NOXAR (Nitrogen Oxides and Ozone along Air Routes) was permanently installed aboard an in-service Swissair B-747 airliner operating in the North Atlantic Flight Corridor (NAFC).

A striking feature of the upper tropospheric NO_x field is the occurrence of large-scale NO_x enhancements (broad plumes) up to 3000 parts per trillion by volume (pptv). In several case studies the origin of such plumes was investigated using back trajectories, satellite infrared images and lightning observations from the U.S. National Lightning Detection Network (NLDN) and the Optical Transient Detector (OTD) satellite instrument. In the case of frontal activity above the continental U.S., the location of NO_x plumes is explained by means of maps of convective influence. In another case NO_x seems to have been produced by lightning in a marine thunderstorm over the eastern Atlantic.

Lightning activity is often triggered over the warm Gulf Stream, which is found to be an important source for the regional upper tropospheric NO_x budget, at least for the time period considered. With a method called "lightning tracing" it was shown for the first time that (in some cases) the number of lightning flashes, accumulated along back trajectories, is proportional to the NO_x concentrations observed several hundred kilometers downwind of the anvil outflows. Correlations were also observed on several other cases, which provides evidence that the frequently observed NO_x plumes are predominately caused by lightning discharges. If this view holds, the NO_x budget (immediately below the tropopause) would be largely dominated by the lightning source in the aftermath of thunderstorms. However, a conclusive answer is only possible with simultaneous measurements of tracers of planetary boundary layer pollution. Alternatively, the number of lightning flashes can be viewed as a proxy for the strength of updrafts and thus vertical transport of pollution from the planetary boundary layer. At least for thunderstorms occurring over clean marine air this second possibility can be precluded providing a model for discrimination of the two NO_x sources.

From the fact that NO_x -lightning correlations could even be observed hours to days after convective impact, it is concluded that mixing processes in active thunderstorms rapidly reduce the initially highly heterogeneous NO_x field but that following this phase, the structure of large scale plumes remains stable over relatively long periods of

time (as they decay). Understanding about upper tropospheric mixing processes could eventually be improved by investigating the decay of fine scale structure in plumes with different ages.

A climatology of air masses rising slowly from the boundary layer to cruising altitude of the B-747 has been established. The analysis suggests that the speed at which vertical transport takes place is critical for the fate of NO_x molecules contained in ascending air masses. In contrast to rapid ascent during convection (which typically results in broad NO_x plumes), NO_x mixing ratios in slowly ascending air masses were generally lower than within air masses without a history of prior ascent. It is suggested that these low NO_x concentrations are caused by washout processes (via the formation of nitric acid) taking place in the cloud systems accompanying ascending air masses.

ZUSAMMENFASSUNG

Während der Monate August bis November 1997 wurden im Rahmen der Projekte POLINAT 2 (Pollution in the North Atlantic Flight Corridor) und NASA SONEX (SASS Ozone and Nitrogen Experiment) auf 98 Flügen Stickoxid- ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$) und Ozon-Konzentrationen gemessen. Das vollautomatische Messsystem NOXAR war in einem B-747 Linienflugzeug der Swissair installiert. Das Flugzeug wurde während dieser Zeit hauptsächlich auf der Nordatlantik-Route eingesetzt.

Das NO_x Feld in der oberen Troposphäre ist gekennzeichnet durch grossskalige Erhöhungen der NO_x -Konzentration bis zu 3000 pptv (broad-plumes). Diese NO_x -„broad plumes“ erstreckten sich über einige hundert Kilometer. In mehreren Fallstudien wurden die Bildungsmechanismen solch grosser NO_x -Konzentrationen untersucht, und zwar mit Hilfe von Rückwärts-Trajektorien, Infrarotbildern von Satelliten, Beobachtungen der Blitzaktivität durch das US-National Lightning Detection Network (NLDN) und mit Hilfe von Informationen des satellitengestützten Instrumentes OTD.

Mit eigens für SONEX entwickelten Karten zur Darstellung der Verteilung von konvektiv beeinflussten Luftmassen, konnte die geografische Lage von NO_x -„broad plumes“ für eine Reihe von untersuchten Flügen erklärt werden. In einem weiteren Fall scheint NO_x durch Blitzaktivität in einem marinen Gewitter über dem östlichen Atlantik entstanden zu sein.

Gewitter werden oft über dem warmen Golfstrom ausgelöst, was sich als wichtige Quelle für die regionale NO_x -Bilanz in der oberen Troposphäre herausstellte, zumindest in der untersuchten Zeitspanne. Mit einer neu entwickelten Methode, genannt „lightning tracing“, konnte zum ersten Mal gezeigt werden, dass die beobachteten NO_x -Konzentrationen in gewissen Fällen proportional zur Anzahl der Blitze - summiert über die Rückwärts-trajektorien - ist. Die dazugehörigen NO_x -Konzentrationen wurden mehrere hundert Kilometer im Lee von Gewitterzonen gemessen. Das Auftreten einer derartigen Korrelation ist ein starker Hinweis darauf, dass die häufig beobachteten „broad plumes“ tatsächlich auf die Blitze zurückzuführen sind. Wenn diese Interpretation stimmt, wäre die NO_x -Bilanz unmittelbar unterhalb der Tropopause weitgehend durch Blitzaktivitäten aus Gewitterzonen bestimmt. Zur eindeutigen Beantwortung dieser Frage müssten jedoch gleichzeitig Indikatoren für Verschmutzungen aus der planetaren Grenzschicht gemessen werden. Andererseits kann die Anzahl der Blitze als Indikator für die Intensität des Vertikaltransportes angesehen werden, durch welchen Luftverschmutzung aus der planetaren Grenzschicht auf Reiseflughöhe gehoben werden kann. Zumindest für Gewitteraktivitäten über sauberer Meerluft kann diese zweite NO_x -Quelle aber ausgeschlossen werden.

Aus der Tatsache, dass die Korrelation zwischen NO_x und Blitzaktivität sogar Stunden oder Tage nach konvektiven Ereignissen beobachtet werden kann, folgt, dass Mischprozesse aktiver Gewitterzellen die anfänglich sehr heterogene Verteilung von NO_x rasch verkleinern, dass aber nach dieser Phase die Struktur ausgedehnter NO_x -Ansammlungen während relativ langer Zeit stabil bleibt (während NO_x gleichzeitig chemisch zerfällt). Analysen der Feinstruktur solcher NO_x -Ansammlungen und ihrer Verminderung über die Zeit könnten das Verständnis für Mischprozesse in der oberen Troposphäre verbessern.

Es wurde eine Klimatologie von Luftmassen, die langsam von der planetaren Grenzschicht bis auf Flughöhe der B-747 ansteigen, erarbeitet. Aus der Analyse lässt sich folgern, dass die vertikale Geschwindigkeit entscheidend für das Schicksal der in den Luftmassen enthaltenen NO_x -Moleküle ist. Im Unterschied zur Konvektion (welche häufig broad-plumes auf Reiseflughöhe hinterlässt) enthielten langsam aufgestiegene Luftmassen tiefere Konzentrationen als Luftmassen ohne Aufstieg. Dies legt den Schluss nahe, dass die tiefen NO_x -Konzentrationen eine Konsequenz von in den Wolken stattfindenden Auswaschprozessen (via die Bildung von Salpetersäure) sind.