

Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung
Sektion Atmosphärische Zirkulation

**Bestimmung von Ozonabbauraten über der Arktis und Antarktis mittels
Ozonsonden- und Satellitendaten**

Dissertation
zur Erlangung des akademischen Grades
"doctor rerum naturalium"
(Dr. rer. nat.)
in der Wissenschaftsdisziplin "Physik"

eingereicht an der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Potsdam

von
Martin Albert Gerhard Streibel

Potsdam, den 27.06.2005

Inhaltsverzeichnis

Kapitel 1 Einleitung	1
Kapitel 2 Dynamik der winterlichen Stratosphäre	5
2.1 Aufbau der Atmosphäre	5
2.2 Grundlegende Größen	6
2.2.1 Die ideale Gasgleichung und das hydrostatische Gleichgewicht	6
2.2.2 Die potentielle Wirbelstärke	6
2.2.3 Die potentielle Temperatur	7
2.3 Bildung des Polarwirbels	9
2.4 Die Zirkulation in der winterlichen Stratosphäre	10
2.5 Der Arktische und Antarktische Polarwirbel	11
2.5.1 Einflussfaktoren auf den Polarwirbel	13
2.5.2 Stratosphärenenerwärmungen	14
Kapitel 3 Ozon in der Stratosphäre	17
3.1 Chapman Chemie	17
3.2 Anthropogene Einflüsse auf den stratosphärischen Ozonhaushalt: Die Halogene	18
3.3 Aerosole in der Stratosphäre	21
3.3.1 Das stratosphärische Hintergrund-Aerosol	21
3.3.2 Polare Stratosphärische Wolken	22
3.4 Die Ozon-Chemie im Polarwirbel	24
3.4.1 Heterogene Chemie	25
3.5 Die vertikale Ozonverteilung	26
3.6 Polare Ozonverteilung	28
3.6.1 Die Ozonverteilung über der Arktis	28
3.6.2 Die Ozonverteilung über der Antarktis	31
3.7 Instrumente zur Messung von Ozon	35
3.7.1 Ozonsonden	35
3.7.2 Satellitenmessungen: ILAS II und POAM III	37
3.7.2.1 ILAS II-Spektrometer	40
3.7.2.2 POAM III-Spektrometer	41
Kapitel 4 Matchtechnik	43
4.1 Verschiedene Methoden zur Bestimmung von polarem Ozonabbau	43
4.1.1 Die Tracer-Korrelationstechnik	43
4.1.2 Die Wirbelmitteltechnik	43

4.1.3 Die Passive Subtraktionstechnik	44
4.1.4 Vergleich der Techniken	44
4.2 Die Matchtechnik	44
4.2.1 Die Matchkriterien	45
4.2.2 Qualitätsparameter	48
4.3 Kampagnenkoordinierung	50
4.3.1 Sondenabdrift	53
4.3.2 Besonderheiten der Arktischen Kampagnenkoordinierung	54
4.3.3 Besonderheiten der antarktischen Kampagnenkoordinierung	55
Kapitel 5 Statistische Auswertung	57
5.1 Lineare Regression	58
5.2 Fehlerbetrachtung	58
5.3 Erweiterte Fehlerrechnung	60
Kapitel 6 Arktische Matchkampagne 2002/2003	63
6.1 Meteorologie des arktischen Winters 2002/2003	63
6.1.1 Die Wirbelgrenze	65
6.1.2 Die Wirbelfläche	67
6.2 Matchergebnisse	67
6.2.1 Verteilung der Matche im Wirbel	67
6.2.2 Ozonabbauraten	70
6.2.3 Integrierter Ozonabbau	70
6.2.4 Test auf Ozonabbau in Dunkelheit	74
6.2.5 Einfluss der Gitterpunktauflösung der meteorologischen Daten auf die Ozonabbauraten	75
6.2.6 Sensitivität der Ozonabbauraten auf die diabatischen Heizraten	75
6.2.7 Rückwärtsmatchradius	77
6.3 Vergleich mit anderen Ergebnissen	84
Kapitel 7 Antarktische Matchkampagne 2003	85
7.1 Meteorologie des antarktischen Winters 2003	85
7.1.1 Die Wirbelgrenze	89
7.1.2 Die Wirbelfläche	89
7.2 Matchergebnisse	90
7.2.1 Verteilung der Matche im Wirbel	90
7.2.2 Ozonabbauraten	93
7.2.2.1 Höhenzeitschnitt der Ozonabbauraten	94
7.2.3 Sensitivität der Ozonabbauraten auf die diabatischen Heizraten	100
7.2.4 Test auf den zweiten Matchradius	100
7.2.5 Integrierter Ozonabbau	104
Kapitel 8 Multisensor-Matchtechnik	107
8.1 Theorie der Multisensor-Matchtechnik	107
8.1.1 Anwendung der multivariaten Regression zur Bestimmung von Ozonabbauraten verschiedener Sensoren	109
8.1.2 Fehlerrechnung für die Anwendung der multivariaten Regressionsanaly- se	110

8.2 Technische Aspekte	112
8.2.1 Berechnung der Schwarmtrajektorien:	112
8.2.2 Qualitätskriterien	113
8.2.3 Begrenzung der Selbstmatche.	113
8.3 Ergebnisse der Multisensor-Matchtechnik	115
8.3.1 Ozonabbauraten	115
8.3.2 Der relative Bias zwischen den Ozonsonden und den Satelliten-Experimenten	118
8.4 Ansatz zur Kontrolle der eingesetzten Heizraten mit Matchtechnik . .	121
Kapitel 9 Zusammenfassung	125
9.1 Arktis 2002/2003	125
9.2 Antarktis 2003	128
9.3 Multisensor-Matchtechnik	129
9.4 Vergleich Arktis mit Antarktis	130
9.5 Ausblick	131
Anhang A Ozonsondenstationen in der Arktis	133
Anhang B Ozonsondenstationen in der Antarktis	135
Literaturverzeichnis	137

Kapitel 1

Einleitung

Zwanzig Jahre nach der Entdeckung der großräumigen Ozonzerstörung in der unteren antarktischen Stratosphäre im Frühjahr (Chubachi, 1982; Farman et al., 1985) sind viele Fragen zu den qualitativen Prozessen geklärt (WMO, 2003). Diese Ozonzerstörung wird vom Menschen verursacht, da sie durch die Abbauprodukte von anthropogen emittierten Fluorchlorkohlenwasserstoffen (FCKW) und Halonen hervorgerufen wird.

Die Ozonschicht filtert die harte ultraviolette Strahlung aus dem Sonnenspektrum und ermöglicht dadurch die Entwicklung und den Fortbestand des Lebens auf der Erde. Daher stellt die drastische Ozonreduktion im Frühjahr eine Bedrohung für die Tier- und Pflanzenwelt des antarktischen Ökosystems dar. In den 1990er Jahren zeigte sich, dass auch über der von Menschen dicht besiedelten Nordhemisphäre eine chemisch verursachte Ozonreduktion im Winter bis in das Frühjahr hinein auftritt (Hofmann et al., 1989; Manney et al., 1994; von der Gathen et al., 1995).

Obwohl die Hauptemissionsquellen der ozonzerstörenden Komponenten in der Nordhemisphäre liegen, fällt der Ozonabbau in den nördlichen polaren Breiten weniger drastisch aus als über der Antarktis, was eine Konsequenz der unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen in der jeweiligen Hemisphäre ist. Aufgrund der Land-See Verteilung werden in der Nordhemisphäre verstärkt planetare Wellen angeregt, wodurch der arktische Polarwirbel eine starke Jahr-zu-Jahr Variabilität aufweist mit zum Teil deutlich höheren Temperaturen als in der Antarktis. Da der Ozonabbau stark von der Temperatur abhängt, ist eine Vorhersage der zukünftigen Entwicklung der Ozonschicht über der Arktis erschwert (Austin et al., 2003; WMO, 2003). Darüber hinaus wird der chemische Ozonabbau in polaren Breiten durch den Transport ozonreicher Luft aus niedrigen Breiten maskiert. Zur Trennung des chemischen Ozonabbaus von der dynamischen Umverteilung des Ozons wurde die so genannte Matchmethode entwickelt, bei der Luftpakete innerhalb des Polarwirbels mehrfach beprobt werden, um den chemischen Anteil zu quantifizieren. Dieser Methode liegt ein statistischer Ansatz zugrunde, der die Berechnung von Ozonabbauraten zulässt, also der Ozonzerstörung in einem bestimmten Zeitintervall (von der Gathen et al., 1995; Rex et al., 1997b). Seit 1991/1992 ist in fast jedem arktischen Winter eine Matchkampagne durchgeführt worden, allerdings noch nie in der Antarktis.

Zur Erklärung des gemessenen Ozonabbaus im System Atmosphäre werden Rechenmodelle unterschiedlicher Komplexität genutzt. Die mit der Matchmethode bestimmten Abbauraten und damit der quantitative Verlauf des arktischen Ozonabbaus wurde von einfachen wie komplexen Chemie-Modellen bisher aber nur unvollkommen wiedergegeben (Becker et al., 1998; Rex et al., 2003).

Um abzuschätzen, wie sich die globale Ozonschicht in Zukunft entwickeln wird, ist neben den dynamischen Aspekten ein quantitatives Verständnis der chemischen Prozesse nötig, die zum Ozonabbau führen. Da Ozon das wichtigste Treibhausgas in der Stratosphäre ist, besitzt es über die Absorption von Strahlung einen direkten und über die Kopplung von Tropo- und Stratosphäre einen indirekten Einfluss auf das Klima in der Troposphäre. Der polare Ozonabbau spielt dabei eine wichtige Rolle für das globale Ozonbudget.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden in zwei Matchkampagnen Ozonabbauraten im arktischen und zum ersten Mal auch im antarktischen Wirbel bestimmt. Einerseits sollen die weiteren Ozonabbauraten zu einer Verbesserung der Matchstatistik in der Arktis führen. Andererseits wird der Vergleich von arktischen und antarktischen Abbauraten dazu beitragen, Defizite in den heutigen Chemie-Modellen zu lokalisieren und anhand der Daten eine Verbesserung der Boxmodelle bzw. chemischen Transportmodelle zu erzielen. Dies ist der Schwerpunkt des EU-Projekts *Quantitative Understanding of Ozone losses by Bipolar Investigations (QUOBI)* in dem die vorliegende Arbeit stattfand.

Ein zusätzlicher Aspekt der antarktischen Matchkampagne ist die Dokumentation der Ozonabbauraten in der antarktischen Stratosphäre zum Zeitpunkt der maximalen Chlorbelastung. Trotz der schnellen Übereinkunft zur Einstellung der FCKW-Produktion in internationalen Abkommen, z.B. dem Montreal Protokoll 1987, wurde aufgrund der langen Lebensdauer der FCKW die maximale Chlorbelastung der Stratosphäre erst in den letzten Jahren erreicht. Berechnungen prognostizieren, dass die Konzentration des Chlors in der Stratosphäre bis zum Jahr 2050 auf Werte zurückgehen wird, wie sie im Jahre 1980 herrschten (WMO, 2003). Ob bis dahin die kontinuierliche Abnahme des stratosphärischen Chlors auch zur erwarteten kontinuierlichen Abnahme des Ozonabbaus führen wird, hängt jedoch auch von der weiteren Entwicklung der Dynamik in der Stratosphäre ab.

Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt auf der Koordinierung der Ozonsonden und der Auswertung der in den Kampagnen gewonnenen Daten. Bisher wurde die Matchmethode nur auf Ozonmessungen eines Sensors angewendet, da bei der Nutzung von Ozondaten mehrerer Sensoren der systematische Fehler zwischen den einzelnen Sensoren berücksichtigt werden muss. Aus diesem Grund wurde die Matchmethode erweitert, um neben Ozonsondendaten auch die gut aufgelösten Ozonprofile von Satelliten zu integrieren. Dies ermöglicht unter anderem die Evaluierung der Matchmethode, da nun zum ersten Mal Ozonabbauraten unterschiedlicher Sensoren mit einer einheitlichen Methode berechnet werden.

Die Arbeit gliedert sich folgendermaßen:

Im zweiten Kapitel werden die dynamischen Grundlagen der winterlichen Stratosphäre erläutert. Das dritte Kapitel geht auf die chemischen Prozesse in der Atmosphäre ein, erläutert die Kopplung von ozonrelevanter Chemie und Dynamik und beschreibt die Verteilung des polaren Ozons in beiden Hemisphären. Darüber hinaus werden die eingesetzten Messgeräte, die zur Ermittlung der Ozonprofile herangezogen wurden, vorgestellt. Kapitel vier beschreibt verschiedene Techniken zur Bestimmung des arktischen Ozonabbaus und erklärt die Besonderheiten der Ozonsonden-Matchtechnik, sowie deren Neuerungen. Die Weiterentwicklung der Matchmethode machte deutlich, dass die bisherige Fehlerrechnung unzureichend war. Daher wird in Kapitel fünf eine Beschreibung der statistischen Auswertung und exakten Fehlerrechnung für den Ozonsonden-Matchtechnik wiedergegeben, die in den folgenden Ergebniskapiteln zum Ozonsondenmatch zur Anwendung kommt. In Kapitel sechs und sieben werden auf der Grundlage

meteorologischer Bedingungen die Matchergebnisse des arktischen Winters 2002/2003 und des antarktischen Winters 2003 analysiert und miteinander verglichen. In Kapitel acht werden die Theorie und die Ergebnisse des Multisensor-Matchansatzes präsentiert. Kapitel neun fasst die gewonnenen Ergebnisse vor dem Hintergrund der über zehn Jahre langen Matchzeitserie zusammen und diskutiert sie.

Kapitel 2

Dynamik der winterlichen Stratosphäre

2.1 Aufbau der Atmosphäre

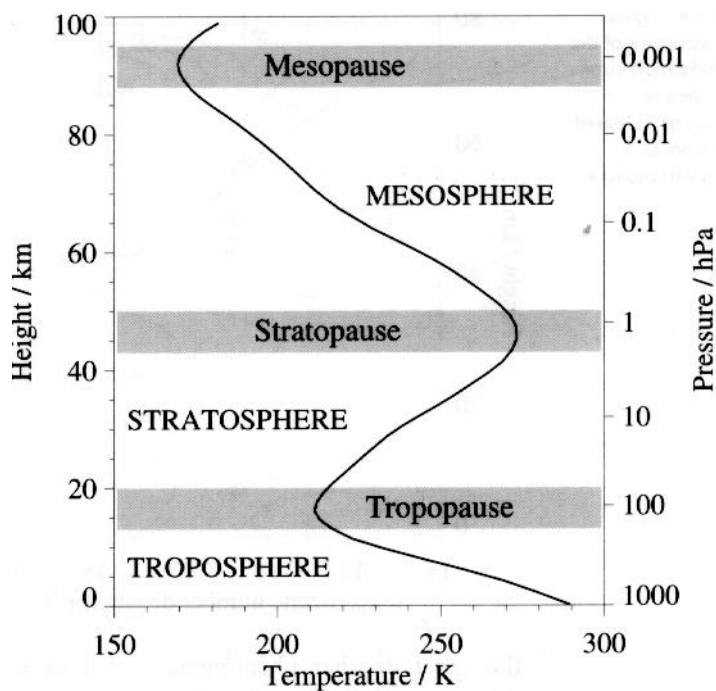


Abbildung 2.1: Aufbau der Atmosphäre. In schwarz ist ein mittleres Temperaturprofil wiedergegeben (Andrews, 2000). Bei den Pausen handelt es sich um Höhen, die in Abhängigkeit der geographischen Breite schwanken kann und daher als Bereiche eingezeichnet worden sind.

Die Atmosphäre kann aufgrund der Änderung des Temperaturgradienten in einzelne Schichten unterteilt werden, die Troposphäre, Stratosphäre, Mesosphäre und Thermosphäre (siehe Abbildung 2.1). Zwischen den einzelnen Luftschichten mit einem einheitlichen Temperaturgradienten liegen dünne Luftschichten in denen der Temperaturgradient sein Vorzeichen wechselt. Diese Höhen werden Pausen genannt. Da bis zu einer Höhe von ca. 100 km die atmosphärischen Gase gut durchmischt sind, wird die gesamte darunter liegende Schicht als Homosphäre bezeichnet. Die Troposphäre, die vom Boden bis ca. 18 km Höhe in den Tropen bzw. ca. 8 km in den polaren Breiten reicht, wird durch die kontinuierliche Temperaturabnahme mit der Höhe nahe dem adiabatischen Temperaturgradienten charakterisiert. Dadurch können sich labile Schichtungen der

Luftmassen in der Troposphäre ausbilden, die einen raschen vertikale Massen- und Energietransport erlauben. 85-90% der atmosphärischen Masse befinden sich in der Troposphäre. Die Luftmassen in der sich anschließenden Luftschicht, der Stratosphäre, die sich von der Tropopause bis ca. 50 km Höhe erstreckt, sind aufgrund der Temperaturzunahme stabil geschichtet. 90% des atmosphärischen Ozons befinden sich in der Stratosphäre. Das Ozon absorbiert einen großen Teil der harten UV-Strahlung, was zur Temperaturzunahme in diesem Höhenbereich führt. Das Konzentrationsmaximum des Ozons liegt in Abhängigkeit von der geographischen Breite zwischen 15 und 25 km. Darüber befindet sich die Mesosphäre, die bis zur Mesopause in ca. 80-90 km Höhe reicht. Hier liegt wieder ein negativer Temperaturgradient vor, und so

sind in dieser Schicht rasche dynamisch ausgelöste Vertikalbewegungen möglich, wie in der Troposphäre. Von der Mesopause ab erstreckt sich die Thermosphäre in der Ionisierungsprozesse mit der Höhe zunehmen. Die Temperatur ist hier von der Sonnenaktivität abhängig und es werden Werte bis zu 2000 K am oberen Rand erreicht.

2.2 Grundlegende Größen

2.2.1 Die ideale Gasgleichung und das hydrostatische Gleichgewicht

In der Atmosphäre bis 100 km können die thermodynamischen Größen Temperatur (T), Dichte (ρ) und Druck (p) gut durch die ideale Gasgleichung beschrieben werden:

$$p = \rho RT. \quad (2.1)$$

R ist die Gaskonstante für trockene Luft ($R = 287 \text{ m}^2\text{s}^{-2}\text{K}^{-1}$). Der Zusammenhang zwischen dem Druck und der geometrischen Höhe (z) ist durch das hydrostatische Gleichgewicht gegeben:

$$\frac{dp}{dz} = -\rho g, \quad (2.2)$$

g bezeichnet die Erdbeschleunigung. Setzt man Gleichung (2.1) in Gleichung (2.2) ein, ergibt sich:

$$p = p_0 \exp\left(-\frac{zg}{RT}\right). \quad (2.3)$$

Der Ausdruck $H = \frac{RT}{g}$ stellt die Skalenhöhe dar, die Höhe in der der Druck auf 1/e seines ursprünglichen Wertes abgenommen hat. Für eine typische stratosphärische Temperatur von $T = 240 \text{ K}$ erhält man eine Skalenhöhe von 7 km.

2.2.2 Die potentielle Wirbelstärke

Die Beschreibung der Wirbelstärke horizontaler Strömungen erfolgt über die potentielle Wirbelstärke, für die sich der englische Ausdruck *Potential Vorticity* (PV) durchgesetzt hat. Sie ist definiert nach Ertel (1942) als:

$$PV = -g(\zeta + f) \frac{\partial \Theta}{\partial p}, \quad (2.4)$$

f ist der Coriolisparameter ($f = 2\Omega \sin \phi$), mit $\Omega = 2\pi/\text{Tag}$ und der Breite ϕ . ζ ist die vertikale Komponente des Rotors $\vec{\nabla}$ und ist ein Maß für die Vorticity horizontaler Strömungen. Der Ausdruck $\eta = \zeta + f$ gibt die absolute Vorticity wieder.

Bei der PV handelt es sich um eine Erhaltungsgröße für adiabatische Prozesse. Sie nimmt mit der Höhe zu. Eine günstige Einheit der Ertelschen potentiellen Vorticity in der Stratosphäre ist:

$$1 \text{ PVU (Potential Vorticity Unit)} = 10^{-6} \text{ Km}^2/\text{skg}.$$

In der vorliegenden Arbeit wird in erster Linie mit der normierten potentiellen Wirbelstärke (nPV) nach Rex et al. (1998) gerechnet. Als Grundlage dient die für adiabatische Bewegungen ebenfalls konservative skalierte PV (sPV), die von Dunkerton und Delisi (1986) eingeführt wurde. Um die sPV zu erhalten wird die Ertelsche PV durch ein mittleres Profil der potentiellen Temperatur skaliert, siehe Gleichung (2.5). Die sPV wird mit einem konstantem Normierungsfaktor k multipliziert und ergibt so nPV . Damit wird die Übereinstimmung der nPV mit der Ertelschen PV auf dem $\Theta = 475$ K Niveau erreicht.

$$nPV = \frac{PV}{\left(g \cdot \frac{\partial \Theta_0(p)}{\partial p} \right)} \cdot k \quad (2.5)$$

Die PV wird in dieser Arbeit aus den meteorologischen Daten des Europäischen Zentrums für Mittelfristige Wettervorhersagen (EZMW) entnommen. Bei $\Theta_0(p)$ handelt es sich um ein mittleres Profil der potentiellen Temperatur. Das Profil für die Arktis stammt aus der Mittelung von ca. 500 Radiosondenaufstiegen an der Station Ny-Ålesund in den Monaten Dezember, Januar und Februar der Jahre 1988-1996. Für die Antarktis wurden ca. 340 Sondenaufstiege der Neumayer Station der Monate Juni-September von 1992-2000 verwendet. Zwischen 350 K und 700 K wird die Umkehrfunktion dieser gemittelten Profile sehr gut durch folgendes Polynom approximiert:

$$p = p_0 \cdot \exp(a_0 + a_1 \cdot \Theta_0 + a_2 \cdot (\Theta_0)^2 + a_3 \cdot (\Theta_0)^3). \quad (2.6)$$

Θ_0 gibt die potentielle Temperatur der betrachteten PV wieder. Tabelle 2.1 zeigt die einzelnen Faktoren, die für die Arktis und Antarktis berechnet wurden (persönliche Mitteilung von der Gathen, 2003).

Tabelle 2.1: Faktoren für die Gleichungen (2.5) und (2.6).

Faktor	a_0	a_1 [K ⁻¹]	a_2 [K ⁻²]	a_3 [K ⁻³]	k
Arktis	12,480	3,212 x 10 ⁻²	3,708 x 10 ⁻⁵	-1,627 x 10 ⁻⁸	2,65 x 10 ⁵
Antarktis	12,7599	-3,5121 x 10 ⁻²	4,3169 x 10 ⁻⁵	-1,9912 x 10 ⁻⁸	3,23 x 10 ⁵
p_0 [hPa]	1,0 hPa				

2.2.3 Die potentielle Temperatur

Der erste Hauptsatz der Thermodynamik kann für ein ideales Gas in folgender Form geschrieben werden:

$$c_p d \ln T - R d \ln p = Q. \quad (2.7)$$

c_p ist die spezifische Wärmekapazität für Luft bei konstantem Druck. Q ist die Wärme. Integriert man Gleichung (2.7) für den Fall $Q = 0$ ergibt sich folgende Gleichung:

$$\Theta = T \cdot \left(\frac{p_0}{p} \right)^{\frac{R}{c_p}}. \quad (2.8)$$

Gleichung (2.8) ist die Definitionsgleichung der potentiellen Temperatur Θ . Wird ein Luftpaket mit dem Druck p und der Temperatur T adiabatisch auf den Referenzdruck p_0 komprimiert (expandiert) erwärmt (kühlt) es sich auf die Temperatur Θ (ab). R/c_p wird als κ bezeichnet, der Adiabatenexponent, und besitzt einen Betrag von $2/7$ für trockene Luft. Die Stratosphäre ist aufgrund der nach oben hin zunehmenden Temperatur stabil geschichtet. Daher kann die potentielle Temperatur anstatt der geometrischen Höhe oder des Druckes als vertikale Skala genutzt werden. Die Flächen konstanter potentieller Temperatur sind Flächen gleicher Entropie und werden daher isentrope Flächen genannt. Solange ein Luftpaket keine Wärme mit der Umgebung austauscht und intern keine diabatischen Prozesse erfolgen, die durchlaufenden Prozesse also adiabatisch sind, bleibt das Luftpaket auf derselben Isentrope. Tauscht ein Luftpaket Energie mit der Umgebung aus, steigt es auf oder ab und ändert so seine Entropie. Diese Prozesse werden diabatisch genannt. Die potentielle Temperatur ist somit eine Erhaltungsgröße bei adiabatischen Prozessen.

Der Zusammenhang zwischen der geometrischen Höhe und der potentiellen Temperatur für die analysierten Winter ist in Tabelle 2.2 für die Arktis und Tabelle 2.3 für die Antarktis wiedergegeben.

Tabelle 2.2: Typische Zuordnung der mittleren geometrischen Höhe zum isentropen Niveau im arktischen Polarwirbel 2002/2003. Angegeben sind die Mittelwerte, die aus allen im Wirbel gestarteten Ozonsonden im angegebenen Monat berechnet wurden. Als Maß für die Abweichung ist die Standardabweichung angegeben.

Arktischer Polarwirbel 2002/2003				
Θ [K]	Dezember [km]	Januar [km]	Februar [km]	März [km]
375	13,9 ± 0,5	13,9 ± 0,6	13,1 ± 0,5	13,6 ± 0,8
400	15,5 ± 0,5	15,5 ± 0,6	14,7 ± 0,7	15,2 ± 0,6
425	17,1 ± 0,5	17,0 ± 0,6	16,4 ± 0,7	16,8 ± 0,7
450	18,8 ± 0,4	18,4 ± 0,6	17,6 ± 0,8	18,1 ± 0,6
475	20,1 ± 0,4	19,6 ± 0,7	18,9 ± 1,1	19,3 ± 0,7
500	21,3 ± 0,4	20,7 ± 0,7	20,2 ± 1,1	20,6 ± 0,6
525	22,3 ± 0,4	21,8 ± 0,7	21,6 ± 0,9	21,5 ± 0,6
550	23,3 ± 0,4	22,6 ± 0,7	22,7 ± 0,5	22,4 ± 0,7
575	24,2 ± 0,4	23,4 ± 0,7	23,5 ± 0,5	23,4 ± 0,5
600	25,0 ± 0,4	24,2 ± 0,7	24,4 ± 0,6	24,2 ± 0,5

Tabelle 2.3: Wie Abbildung 2.2 nur für den antarktischen Polarwirbel 2003.

Antarktischer Polarwirbel 2003					
Θ [K]	Juni [km]	Juli [km]	August [km]	September [km]	Oktober [km]
375	14,1 ± 0,5	14,6 ± 0,4	14,8 ± 0,5	14,7 ± 0,4	14,5 ± 0,7
400	15,8 ± 0,5	16,3 ± 0,4	16,4 ± 0,4	16,1 ± 0,4	15,8 ± 0,6
425	17,3 ± 0,4	17,7 ± 0,4	17,7 ± 0,4	17,4 ± 0,4	16,9 ± 0,7
450	18,6 ± 0,4	19,0 ± 0,4	18,9 ± 0,4	18,5 ± 0,4	18,0 ± 0,7
475	20,0 ± 0,3	20,1 ± 0,4	20,0 ± 0,3	19,5 ± 0,5	18,9 ± 0,9
500	21,1 ± 0,3	21,2 ± 0,4	21,0 ± 0,4	20,4 ± 0,6	19,9 ± 0,8
525	22,0 ± 0,3	22,1 ± 0,3	21,9 ± 0,3	21,3 ± 0,6	20,6 ± 0,8
550	23,0 ± 0,3	23,1 ± 0,3	22,7 ± 0,3	22,1 ± 0,5	21,3 ± 0,8
575	23,8 ± 0,3	23,9 ± 0,3	23,4 ± 0,3	22,8 ± 0,5	21,9 ± 0,8
600	24,7 ± 0,4	24,7 ± 0,4	24,2 ± 0,3	23,4 ± 0,6	22,4 ± 0,8

2.3 Bildung des Polarwirbels

Nach der Tagundnachtgleiche führt die abnehmende Sonneneinstrahlung in der jeweiligen Hemisphäre zu einer Erniedrigung der Strahlungsgleichgewichtstemperatur¹ der Luftmassen in der Stratosphäre. Die Folge ist das diabatische Abkühlen der Luftmassen über dem Winterpol, da die Temperatur der Luftmassen nun über der Strahlungsgleichgewichtstemperatur liegt. Dies ist mit einem Absinken der Luftmassen verknüpft und hat die Bildung eines Tiefdruckgebiets bzw. Trichters zur Folge, der als Polarwirbel bezeichnet wird. Insgesamt ist die Abstrahlung von Energie größer als die Aufnahme, was dazu führt, dass sich im Polarwirbel ein Kältegebiet ausbildet.

So bildet sich ein meridionaler Druck - und Temperaturgradient zwischen dem Äquator und den polaren Breiten aus. Der Druckgradient beschleunigt ruhende Luftmassen vom Äquator in Richtung Pol. Bei einer von Null verschiedenen Geschwindigkeit wirkt die Corioliskraft auf das Luftpaket ein, die es auf der Nordhemisphäre nach rechts und auf der Südhemisphäre nach links ablenkt. Damit erfährt das Luftpaket eine Kraft senkrecht zum Druckgradienten. Im Gleichge-

1. Als Strahlungsgleichgewichtstemperatur wird die Temperatur verstanden, die sich durch die Absorption und Emission von Strahlung durch Spurengase einstellt.

wicht zwischen Druckgradientenkraft und Corioliskraft bewegt sich ein Luftpaket breitenparallel (zonal). Es herrscht im Winter eine nach Osten gerichtete zonale Grundströmung, bzw. Westwinde in der Stratosphäre. Diese Strömung wird als geostrophischer Wind² bezeichnet. Ein starker horizontaler Temperaturgradient führt zu einem Anstieg der Geschwindigkeit des geostrophischen Windes mit der Höhe (thermischer Wind). Das führt zu einem Starkwindband mit einem Zentrum zwischen 50° und 70° geographischer Breite und 45 km Höhe, das mit dem Rand des Polarwirbels zusammenfällt (Nash et al., 1996). Die Vertikalgeschwindigkeit des Windes ist klein im Gegensatz zur zonalen und meridionalen Komponente des Windes.

Da die PV für adiabatische Prozesse eine Erhaltungsgröße ist, ist der Transport von Luftmassen über die Wirbelgrenze hinweg, die durch einen starken PV-Gradienten charakterisiert ist (siehe Kapitel 6.1 und 7.1), in beide Richtungen stark erschwert. Die Luftmasse innerhalb des Wirbels kann als weitestgehend isoliert angesehen werden. Allerdings können sich am Rand des Wirbels Filamente bilden, die sich ablösen und so Luftmassen aus dem Polarwirbel in mittlere Breiten transportieren. Dynamische Impulse, siehe Abschnitt 2.5.2, können den Wirbel schwächen, so dass ein Luftmassenaustausch in beide Richtungen stattfinden kann. Die Luftmassen außerhalb des Polarwirbels sind gekennzeichnet durch niedrige PV-Werte und bilden die so genannten "Surf Zone" (McIntyre und Palmer, 1983; 1984), die im folgenden Unterkapitel näher erläutert wird.

2.4 Die Zirkulation in der winterlichen Stratosphäre

Betrachtet man ausschließlich den Druck- bzw. Temperaturgradienten sollte sich in der winterlichen Stratosphäre über der Arktis eine nach Osten gerichtete zonale Grundströmung finden lassen, die den Austausch von Luftmassen zwischen Äquator und hohen Breiten verhindert. Tatsächlich haben bereits Brewer (1949) und Dobson (1956) die beobachtete Verteilung von Wasserdampf und Ozon nur mit einem Aufsteigen von Luftmassen in den Tropen und einem langsamen Transport und Absteigen in den hohen Breiten erklären können. Diese Zirkulation wird heute nach ihren Entdeckern Brewer-Dobson Zirkulation genannt. Diese Zirkulation umfasst sowohl den Transport von Spurengasen in hohe Breiten, den Meridionaltransport, als auch Mischungsprozesse, bei denen es zum Luftmassenaustausch, nicht aber zum Transport von Masse über die Breiten hinweg kommt (Shepherd, 2002). Die Umlaufzeit der Brewer Dobson Zirkulation beträgt ca. 5 Jahre (Solomon et al., 1999).

Der Antrieb dieser Zirkulation sind planetare Wellen und Schwerewellen, die in der oberen Stratosphäre bzw. Mesosphäre in den Extratropen brechen. Schwerewellen können sich das ganze Jahr hindurch bis in die Mesosphäre ausbreiten, während planetare Wellen hauptsächlich in den Wintermonaten von der Tropo- bis in die Stratosphäre gelangen. Im Winter herrschen leichte Westwinde in der Stratosphäre vor bei denen sich planetare Wellen der Wellenzahlen 1-3 ausbreiten können (Charney und Drazin, 1961). Treffen die Wellen auf ihre kritische Schicht, brechen sie. Durch die Dissipation der Wellen werden die transportierte Energie und der Impuls an den Grundstrom übertragen, was zu einem Abbremsen des zonalen Grundstroms führt. Das Abbremsen der östlich-zonalen Strömung kommt einer Beschleunigung nach Westen gleich und so werden die Luftpakete durch den Druckgradienten solange in Richtung Pol beschleunigt,

2. Die Windgeschwindigkeit des geostrophischen Windes \vec{v}_g ist wie folgt definiert:

$$\vec{v}_g = \frac{1}{\rho f} \times \nabla p \quad \text{mit der Dichte } \rho, \text{ dem Druckgradienten } \nabla p \text{ und dem Coriolisparameter } f.$$

bis Coriolis- und Druckgradientenkraft wieder im Gleichgewicht sind. Dieser Mechanismus wird als extratropische Pumpe (engl. Extratropical Pump) bzw. Wellenantrieb (engl. Wave Driving) bezeichnet (Haynes et al., 1991). Über dem Winterpol sinken die Luftmassen dann langsam ab, während gleichzeitig die Luftmassen in den Tropen “angesaugt” werden. Dies wird im englischen als “Downward Control“ bezeichnet (Holton et al. 1995). Das Absinken der herant transportierten Luftmassen in den hohen Breiten führt zur weiteren Kompression der Luftmassen im Polarwirbel. Die Luftpakete heizen sich adiabatisch auf, so dass sie über dem Strahlungsgleichgewicht liegen. Das darauf folgende diabatische Abstrahlen langwelliger Strahlung der Luftmassen entspricht dem Absinken der Luftmassen auf Theta-Koordinaten. In einem Jahr mit starker Wellenaktivität kommt es zu vermehrtem Absinken der Luftmassen im Polarwirbel. Dies führt zu verstärkter Emittierung von langwelliger Strahlung und so zu einem wärmeren Polarwirbel.

Der aufsteigende Ast der Brewer-Dobson Zirkulation befindet sich in den Tropen. Dort findet der Haupteintrag von langlebigen Spurengasen in die Stratosphäre statt. Die Luftmassen erfahren beim Aufsteigen eine adiabatische Expansion und kühlen unter die Strahlungsgleichgewichtstemperatur ab. Das ist der Grund für die extrem kalte tropische Tropopause. Diese tiefen Temperaturen sorgen nun für die Dehydrierung der Luftmassen, die von der Troposphäre in die Stratosphäre transportiert werden. Die Luftpakete werden dann über die extratropische Pumpe in mittlere bzw. hohe Breiten transportiert. Sie durchlaufen dabei die Zone starken Wellenbrechens (*Surf Zone*), die durch starke Durchmischung von Spurengasen, gleichbedeutend mit einem geringen Gradienten von Spurengasen und PV, charakterisiert ist.

Durch die Verteilung von See- und Landmassen kommt es zur Anregung von stationären, planetaren Wellen. Diese Wellen werden einmal durch das unterschiedliche Aufheizen von Land und Wasser, sowie durch das Anströmen großer Gebirge wie der Rocky Mountains oder des Himalaja angeregt. Die Wellenlängen liegen im Bereich einiger zehntausend Kilometer.

Schwerewellen gehören zu den kleinskaligen Wellenformen in der Atmosphäre und die Wellenlängen liegen im Bereich von zehn bis tausend Kilometern. Die Anregungsmechanismen für Schwerewellen sind vielfältig. Hines (1974) formulierte die Entstehung von Schwerewellen wie folgt: “Generell kann man sagen, dass alles, was in der Atmosphäre Anregungen auf der Zeitskala von Minuten bis Stunden verursacht, mit der Aussendung von Schwerewellen verbunden sein kann.”

2.5 Der Arktische und Antarktische Polarwirbel

Die Unterschiede beider Polarwirbel ist eine Konsequenz der unterschiedlichen topographischen Gegebenheiten der Nord- und Südhemisphäre. Da die Antarktis ausschließlich von Wasser umgeben ist, führt das zu einer geringeren Wellenanregung in der Südhemisphäre und so zu einem schwächer ausgeprägten meridionalen Transport als in der Nordhemisphäre. Das hat wiederum eine Auswirkung auf das Absinken der Luftmassen im Polarwirbel. In beiden Polarwirbeln findet stärkeres Absinken der Luftmassen zu Anfang des Winters vor allem in der oberen und mittleren Stratosphäre ($\Theta = 800\text{-}2000\text{ K}$) statt. Im Anschluss sinken die Luftmassen in der mittleren und unteren Stratosphäre im antarktischen Wirbel wenig ab, während im arktischen Wirbel den ganzen Winter Absinken stattfindet (Dessler, 2000).

Als Konsequenz aus der geringeren Wellenaktivität in der Südhemisphäre ist der antarktische Wirbel stärker, kälter und symmetrischer, als der arktische, wie man anhand der Verteilung der Temperaturen und der geopotentiellen Höhe³ auf 50 hPa in Abbildung 2.2 sehen kann. Hierbei

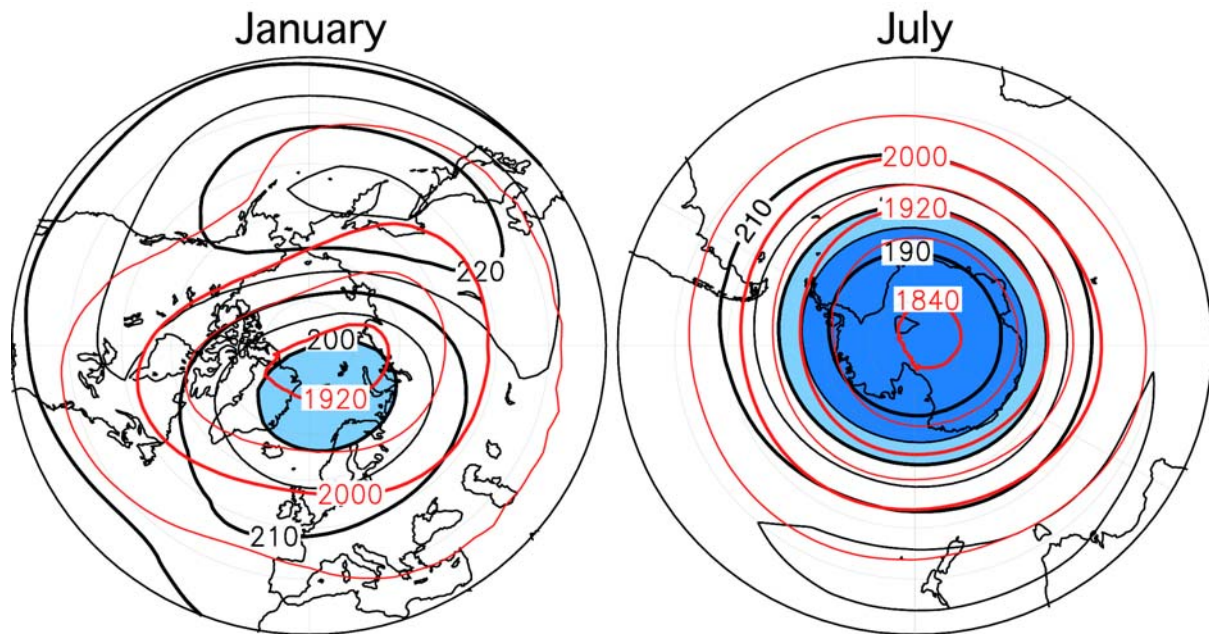


Abbildung 2.2: Vergleich der Polarwirbel über der Arktis (links) im Januar und der Antarktis (rechts) im Juli. Als rote Isolinien sind die geopotentielle Höhen in Dekametern eingezeichnet, die schwarzen Linien geben Flächen gleicher Temperaturen in Kelvin an. Hellblaue Flächen geben Temperaturen niedriger als 200 K, dunkelblaue Flächen geben Temperatur niedriger als 195 K an. Es wurden 19-jährige Klimamittel vom “TIROS Operational Vertical Sounder” (TOVS) verwendet, die vom “United Kingdom Meteorological Office” (UKMO) prozessiert worden sind (Scaife et al., 2000).

ist zu beachten, dass Abbildung 2.2 einen gemittelten Zustand beschreibt. Besonders in der Arktis weichen die tatsächlichen Zustände in der Regel erheblich von dem langjährigen Klimamittel ab. Das Kältezentrum des antarktischen Wirbels fällt mit dem geographischen Südpol zusammen. Auch der Wirbel selber liegt konzentrisch über der Antarktis. Im Wirbel herrschen großflächig Temperaturen niedriger als 195 K.

Der arktische Polarwirbel ist durch das Aläutenhoch, erkennbar an der Einbuchtung der geopotentiellen Höhe über den Aläuten-Inseln, um $\sim 10^\circ$ in Richtung Nordeuropa verschoben. Diese Verschiebung stellt eine zonale Welle mit der Wellenzahl 1 dar und verdeutlicht die Rolle planetarischer Wellen im arktischen Winter. Im klimatologischen Mittel befindet sich das Wirbelzentrum über Spitzbergen. Das Kältezentrum liegt noch etwas weiter südlich. Im Gegensatz zur Antarktis gibt es nur ein kleines Gebiet, in dem die Temperaturen niedriger als 200 K sind.

In einem Winter mit dauerhaft schwacher Wellenaktivität kann es zu einem starken Polarwirbel, einem schwachen Transport von Ozon in hohe Breiten und einem stärkeren chemischen Ozonabbau kommen. Die Temperaturen im Wirbel sind dann niedriger und damit die Wahrscheinlichkeit zur Bildung von polaren stratosphärischen Wolken (engl. Polar Stratospheric Clouds, PSCs) größer (siehe Abschnitt 3.3.2). Zur Verdeutlichung dieses Sachverhaltes sind in Abbildung 2.3 die Minimumtemperaturen im jeweiligen Wirbel gezeigt. Die linke Abbildung

- Als Geopotential Φ wird die Energie verstanden, die man aufbringen muss, um eine Masse vom Meeresboden auf eine geometrische Höhe Z zu bringen: $\Phi = \int_0^Z g dz$, mit g der lokalen Schwerebeschleunigung. Die geopotentielle Höhe \hat{Z} ist definiert als $\hat{Z} = \frac{\Phi}{g_0}$, mit g_0 der global gemittelten Erdbeschleunigung.

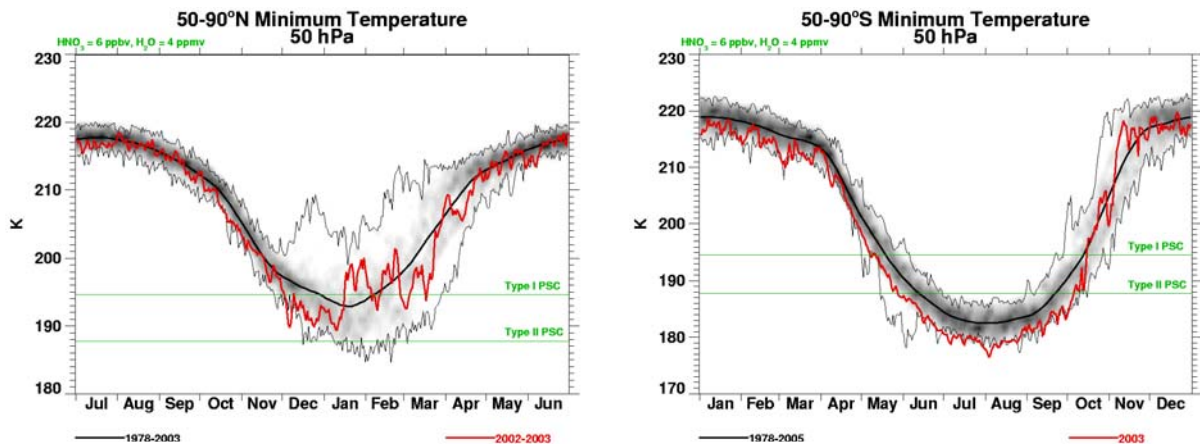


Abbildung 2.3: Minimumtemperatur der 50 hPa Fläche in der Nordhemisphäre (links) und der Südhemisphäre (rechts). Als dicke schwarze Linie ist das klimatologische Mittel von 1978-2003 (Nordhemisphäre), bzw. 1978-2005 (Südhemisphäre) eingezeichnet. Die rote Linie zeigt den Verlauf in den analysierten Wintern. Die Einhüllenden geben die höchsten bzw. niedrigsten Werte der Minimumtemperatur an. Die Existenztemperatur von PSC Typ Ia bzw. II sind in grün angegeben. Als Grundlage dienen Daten des “National Center for Environmental Prediction”, P. Newman, E. Nash, R. Nagatani (http://hyperion.gsfc.nasa.gov/Data_services/met/ann_data.html, 2005).

in 2.3 stellt die Minimumtemperaturen in der Nordhemisphäre zwischen 50° und 90° N Breite dar. Die schwarze Kurve gibt das klimatologische Mittel der Jahre 1978-2003 wieder. In Rot ist der hier analysierte Winter 2002/2003 eingezeichnet. Die Einhüllenden geben die höchsten und tiefsten vorgekommenen Minimumtemperaturen wieder. Als grüne Striche sind die Existenztemperaturen für PSC Typ Ia und II, siehe Abschnitt 3.3.1, angegeben, die nach Hanson und Mauersberger (1988) bzw. Marti und Mauersberger (1992) unter Annahme von 6 ppbv HNO₃ und 4 ppmv H₂O berechnet wurden. Die rechte Abbildung zeigt den gleichen Sachverhalt für die Südhemisphäre. In Rot ist der Temperaturverlauf im antarktischen Winter 2003 angegeben. Der Vergleich zeigt, dass die Minimumtemperaturen in der Nordhemisphäre bis Oktober eine ähnlich geringe Variabilität aufweisen, wie in der Südhemisphäre. Ab Mitte November bis Anfang Mai kann dann die Minimumtemperatur um bis zu 25 K von Jahr zu Jahr schwanken. Dies verdeutlicht die starke jährliche und zwischenjährliche Variabilität der meteorologischen Bedingungen in der Nordhemisphäre. In der Südhemisphäre gibt es das ganze Jahr eine Schwankungsbreite von ca. 10 K. Im klimatologischen Mittel ist die Nordhemisphäre etwa 10 K wärmer als die Südhemisphäre.

2.5.1 Einflussfaktoren auf den Polarwirbel

Der Polarwirbel wird von mehreren Faktoren in der Atmosphäre beeinflusst. Als Einflussfaktor in der Stratosphäre sei hier die Quasi Biennale Oszillation (QBO) von tropischen Winden genannt. Dabei handelt es sich um den Wechsel der Windrichtung des mittleren zonalen Windes in der tropischen Stratosphäre. West- und Ostwinde wechseln sich in einem fast zweijährigen Rhythmus, im Mittel 27 Monate, ab. Labitzke und van Loon (1988; 1997) korrelierten die Struktur des Polarwirbels mit der QBO und dem 11-jährigen Sonnenfleckenzyklus. Mit dieser Einteilung ergeben sich starke Polarwirbel, wenn sich die QBO in der Westwindphase und der Sonnenfleckenzyklus sich im Minimum befinden. Allerdings lassen sich gleichzeitig noch andere Faktoren finden, die für den starken Polarwirbel verantwortlich sein können, wie z.B. Vulkanausbrüche und ENSO-Ereignisse⁴, so dass eine eindeutige Zuordnung nur aufgrund der QBO-Phase und des Sonnenfleckenzyklusses nicht möglich ist.

In der Nordhemisphäre sind Anomalien (Abweichung vom langjährigen Mittel) des Polarwirbels Teil der Arktischen Oszillation. Diese bezeichnet ein atmosphärisches Muster, das die Druckunterschiede zwischen den polaren Breiten und den sie umgebenden mittleren Breiten wiedergibt und sich von der Troposphäre bis in die Stratosphäre erstreckt. Damit verwandt ist die NAO⁵ und von großem Interesse für die Forschung. Hat der NAO-Index einen positiven Wert, d. h. stark ausgebildete Druckzentren an der Erdoberfläche, wird ein starker Polarwirbel beobachtet und bei einem negativen Wert, d. h. schwach ausgebildete Druckzentren, ein entsprechend schwacher Polarwirbel (Baldwin et al., 1994).

Bleibt der Index positiv bis in das Frühjahr, so bleibt der Wirbel kalt, stabil und isoliert und führt zu geringen Ozonwerten. Aus den Beobachtungen allein, kann allerdings nicht abgeleitet werden, ob der positive NAO-Index die niedrigen Ozonwerte begründet, oder umgekehrt oder ob beide das Ergebnis eines dritten Einflusses sind.

2.5.2 Stratosphärenenerwärmungen

Bei Stratosphärenenerwärmungen handelt es sich um plötzlich auftretende Erwärmungen in der Stratosphäre, die durch die Dissipation von planetaren Wellen und der so übertragenen Energie dieser Wellen verursacht werden. Eine solche Erwärmung wurde zum ersten Mal von Scherhag 1952 über Berlin beobachtet und wird als *Berliner Phänomen* bezeichnet (Scherhag, 1952). Dabei werden unterschiedliche Erwärmungstypen je nach Temperaturanstieg und der vertikalen Erstreckung unterschieden (Labitzke, 1999).

Um eine kleine Erwärmung (engl. Minor Warming) handelt es sich, wenn innerhalb von einer Woche in einer beliebigen Höhenschicht ein Temperaturanstieg von 25 K stattfindet.

Die großen Erwärmungen (engl. Major Warming) werden klassifiziert durch eine Umkehr des Temperaturgradienten zwischen 60° und 90° geographischer Breite sowie die Umkehr des zonalen Windes von West auf Ost zwischen 60° und 90° Breite bis zur oder unter die 10 hPa Fläche. Das Zentrum des Wirbels liegt in Folge dann südlicher als 65° Breite. Dies geht meist mit einer Teilung des Wirbels einher. Nach der Erwärmung können sich die Merkmale der winterlichen Stratosphäre wieder einstellen und der Wirbel stabilisiert sich wieder.

Als endgültige Erwärmung (engl. Final Warming) wird die Umstellung der winterlichen Westwindzirkulation zur sommerlichen Ostwindzirkulation bezeichnet, die mit der Erwärmung der isolierten Luftmassen über dem Pol einhergeht. Dies kann aus einer großen Erwärmung hervorgehen, wenn sich der Wirbel nach der Störung nicht mehr zurückbildet. Dies findet in der Regel zwischen März und April statt, wobei man frühe Erwärmungen (März bis Mitte April) und späte Erwärmungen (Mitte April - Mai) unterscheidet. Zhou et al. (2000) sehen eine Zunahme der kalten und stabilen Wirbel in der Nordhemisphäre, die bis in den April überleben. In der Südhemisphäre bleibt der Wirbel meist länger bestehen, bis Ende November, Anfang Dezember.

-
4. Die Abkürzung ENSO ist aus *El Nino* und *Southern Oscillation* zusammengesetzt. Bei *El Nino* bzw. *El Nina* handelt es sich um ozeanographische Phänomene, die dem Zustrom von ungewöhnlich warmem bzw. kaltem Wasser vor der südamerikanischen Küste bezeichnen. Die Veränderung der Wassertemperatur ist dynamisch mit dem Bodendruck verknüpft, der durch die *Southern Oscillation* beschrieben wird, der Luftdruckschaukel zwischen dem südostasiatischen Tiefdruckgebiet und dem südostpazifischen Hochdruckgebiet.
 5. Als NAO wird die *nordatlantische Oszillation* bezeichnet. Die NAO beschreibt den Druckunterschied am Boden zwischen dem Islandtief und dem Azorenhoch (Hurrell, 1995).

Kleine Stratosphärenerwärmungen werden in jedem arktischen Winter und einigen antarktischen Wintern in der oberen Stratosphäre beobachtet und können sich bis in die untere Stratosphäre durchsetzen. Grosse Stratosphärenerwärmungen treten seltener im arktischen Wirbel auf und sind bisher nur ein einziges Mal im antarktischen Polarwirbel beobachtet worden. Im September 2002 fand die erste große Erwärmung im antarktischen Polarwirbel statt, die diesen spaltete und verschob (Krüger et al., 2005). Der normalerweise starke antarktische Ozonabbau fiel in Folge moderat aus.

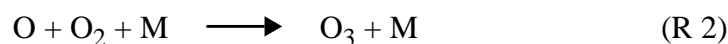
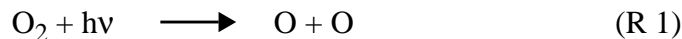
Kapitel 3

Ozon in der Stratosphäre

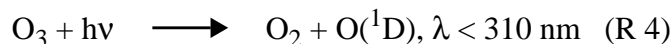
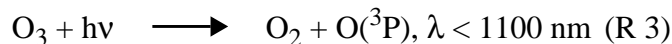
Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Zerstörung der Ozonschicht im arktischen und antarktischen Polarwirbel. Zu Beginn werden die chemischen Grundgleichungen der stratosphärischen Ozonchemie besprochen. Im Anschluss wird auf die besonderen meteorologischen Bedingungen in den Polarwirbeln und die daraus resultierenden Veränderungen der chemischen Reaktionen eingegangen. Darüber hinaus wird eine Beschreibung der jahreszeitlichen und vertikalen polaren Ozonverteilung gegeben. Am Schluss des Kapitels wird auf die Messgeräte eingegangen, deren Messdaten in dieser Arbeit Verwendung finden.

3.1 Chapman Chemie

Ozon wird durch die Einstrahlung kurzer Wellenlängen ($h\nu < 240 \text{ nm}$) auf Sauerstoff gebildet. Dabei photolysiert das Sauerstoffmolekül. Die entstandenen Sauerstoffatome reagieren jeweils mit einem weiteren Sauerstoffmolekül unter der Bildung von Ozon:



Bei M handelt es sich um einen Mediator, ein an der chemischen Umwandlung unbeteiligtes Molekül, das zur Impuls- bzw. Energieerhaltung notwendig ist. Durch Sonnenlicht wird Ozon wieder zerstört, allerdings ist das bei größeren Wellenlängen möglich:



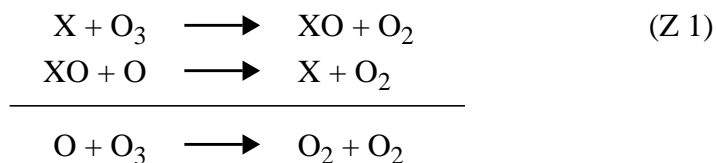
Das Ozonmolekül filtert so einen großen Bereich der für die Biosphäre schädlichen ultravioletten Strahlung aus dem Sonnenspektrum heraus.

Bei O (${}^1\text{D}$) handelt es sich um ein Sauerstoffatom in einem angeregten Zustand, das leicht durch Energieabgabe in den Grundzustand O(${}^3\text{P}$) übergeht. Da Ozon im schnellen Gleichgewicht mit Sauerstoffatomen steht, findet Ozonzerstörung nur dann statt, wenn ein Sauerstoffatom oder ein Ozonmolekül dem Gleichgewicht entzogen wird, wie es in den Reaktionen (R5) und (R6) beschrieben ist. Daher werden zur Beschreibung des Systems die beiden Spezies unter dem Begriff ungradzahliger Sauerstoff, $\text{O}_x = \text{O}$ und O_3 , (engl. Odd Oxygen), zusammengefasst.



Bei den Reaktionen (R1) bis (R4) handelt es sich um den von Chapman (1930) postulierten Zyklus. In den 1960er Jahren wurde anhand von 2D-Modellläufen gezeigt, dass der Chapman Zyklus die Höhenverteilung des Ozons nur unzureichend beschreibt und das Ozonvorkommen besonders in größeren Höhen überschätzt.

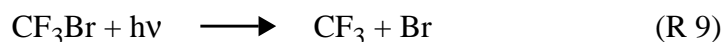
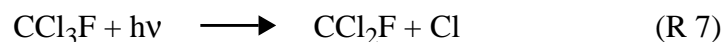
Realistische Vertikalprofile konnten durch das Hinzufügen katalytischer Zyklen erreicht werden, die Ozon abbauen wie z.B. Z1.



Das Radikal X fungiert in der Reaktion als Katalysator. Die wichtigsten natürlichen Ozonabbauzyklen gehen auf Bates (1950) mit $\text{X} = \text{HO}$, dem Hydroxyl-Radikal, und auf Crutzen (1970) mit $\text{X} = \text{NO}$, dem Stickstoffmonoxid-Radikal, zurück. Während der NO-Zyklus die Ozonzerstörung in der mittleren und unteren Stratosphäre dominiert, ist der Einfluss des HO-Zyklus in der oberen Stratosphäre am größten (Brasseur, Orlando, Tynadall, 1999). Bei dem gezeigten Mechanismus Z1 handelt es sich um den Grundtyp der Abbaureaktion. Da das Vorkommen von atomarem Sauerstoff stark mit der Höhe zunimmt und sich die Temperatur ändert, variieren die Abbau-Zyklen in den unterschiedlichen Bereichen der Stratosphäre.

3.2 Anthropogene Einflüsse auf den stratosphärischen Ozonhaushalt: Die Halogene

Mitte der 1970er Jahre machten sich Molina und Rowland (1974) sowie Stolarski und Cicerone (1974) Gedanken über den Verbleib der industriell gefertigten Fluorchlorkohlenwasserstoffe, für die es in der Troposphäre keine natürliche Senke gibt. Sie steigen so in der tropischen Konvergenzzone in die Stratosphäre auf, wo sie der harten UV-Strahlung ausgesetzt sind und die Kohlenstoff-Halogenbindung gespalten wird. So werden die Halogene aus den Verbindungen freigesetzt. Hier sind als Beispiele der jeweils erste Schritt der Abbau-Reaktionen von CFC-11 (CCl_3F) (siehe Reaktion (R7)) und CFC-12 (CF_2Cl_2) (siehe Reaktion (R8)) gezeigt. Dabei handelt es sich um jene Quell-Gase, die 1999 den stärksten Einfluss auf die Chlorbelastung der Stratosphäre hatten (siehe Abbildung 3.1, WMO 2003).



Je mehr Chlor-Atome im Molekül vorhanden sind, desto größer ist die Wellenlänge der Strahlung, die zur Abspaltung eines Halogenatoms ausreicht. Außerdem nimmt damit die Lebensdauer des FCKW ab. Der Abbau-Mechanismus (R8) ist auf angeregte Sauerstoffatome angewiesen und wird mit zunehmender Höhe und abnehmender Anzahl der Chlor-Atome wichtig. Das zweite Halogen, das nach dem heutigen Wissen maßgeblich zum Ozonabbau beiträgt, ist Brom (Wofsy, 1975). Aufgrund der schwächeren Kohlenstoff-Brom Bindung werden diese Halogene sehr schnell durch Sonnenlicht gespalten, was hier am Beispiel von Halon-1301 (CF_3Br) (siehe Reaktion (R9)) gezeigt ist.

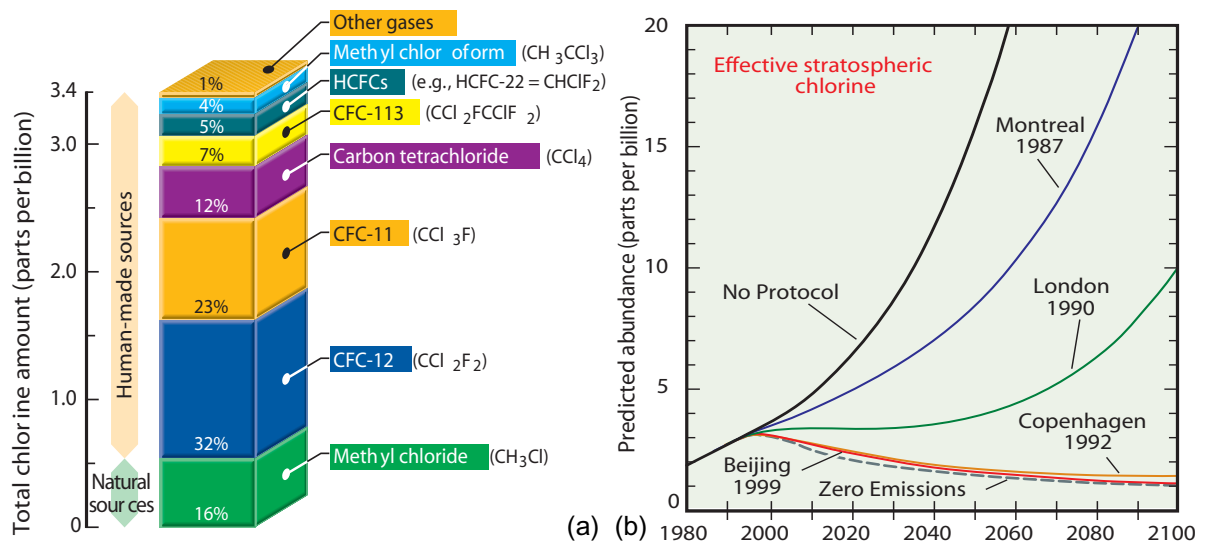


Abbildung 3.1: (a) Quellen für die stratosphärische Chlorbelastung im Jahre 1999. (b) Entwicklung der Halogenbelastung in der Stratosphäre: gezeigt sind Szenarien, die ohne die Einschränkung durch internationale Abkommen eingetreten wären (WMO, 2003).

In Abbildung 3.1 (a) sind die Quellen des stratosphärischen Chlors für das Jahr 1999 wiedergegeben. 16% des vorhandenen Chlors stammt aus natürlichen Quellen. Bei Brom schätzt man, dass ca. 50% des stratosphärischen Vorkommens natürlichen Ursprungs ist (WMO, 2003). Bei den natürlichen Quellen für Chlor und Brom handelt es sich in erster Linie um Methylchlorid bzw. Methylbromid, das von Algen und Mikroorganismen in den Ozeanen gebildet wird.

Vergleicht man Messungen von troposphärischen FCKW der Jahre 1992-1995 mit dem Zeitraum 1999-2000, so hat die Gesamtmenge um ca. 5% abgenommen (WMO, 2003). In der Stratosphäre beobachtet man eine Stagnation des anorganischen Chlors, Cl_y^6 , dessen Konzentration zurzeit ca. 3,5 ppbv beträgt. Die Entwicklung der Halogenbelastung ohne das schnelle politische Eingreifen Mitte der 1980er und die Verschärfungen des Montrealer Protokolls ist in Abbildung 3.1 (b) gezeigt. Die schwarze Kurve zeigt die geschätzte Zunahme des Chlors ohne das Montrealer Protokoll. Die weiteren Kurven geben den geschätzten Verlauf der FCKW Belastung nach der jeweilig verschärften Klimarahmenkonvention wieder. Die rote und orangene Kurve zeigen die heutige Entwicklung nach den Protokollen von Kopenhagen (1992) und Beijing (1999). Diese weichen kaum noch von der Entwicklung ab, die man mit einem sofortigen Stopp der FCKW-Produktion im Jahre 1987 erreicht hätte.

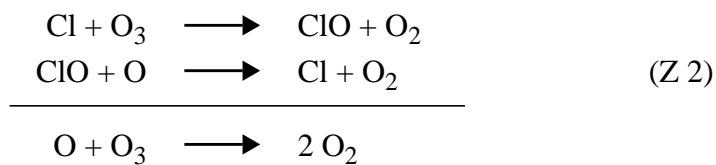
Zur Abschätzung des Gehalts von anorganischem Brom, Br_y^7 , in der Stratosphäre, wurden zwei Techniken angewendet. Zum einen die Abschätzung aus Messungen der organischen Quellgase in der Tropo- und Stratosphäre (organische Brom-Messmethode) (Wamsley et al., 1998; Pfeilsticker et al., 2001). Zum anderen die Messung von BrO in der Stratosphäre und die Berechnung des BrO/Br_y Verhältnisses (anorganische Brom-Messmethode) (Sinnhuber et al., 2002; Pfeilsticker et al., 2000; Harder et al., 2000). Wamsley et al. (1998) errechnet mit der organischen Brom-Messmethode Werte um 16 pptv, die in-situ Messungen ergeben ~20 pptv für die Gesamtsäule des Br_y . Für den Tropopausenbereich wurden lange Zeit Nullwerte für das Mi-

6. $\text{Cl}_y = \text{HCl}, \text{ClONO}_2, \text{HOCl}, \text{ClO}, \text{Cl}_2, \text{Cl}$ und ClOOCl

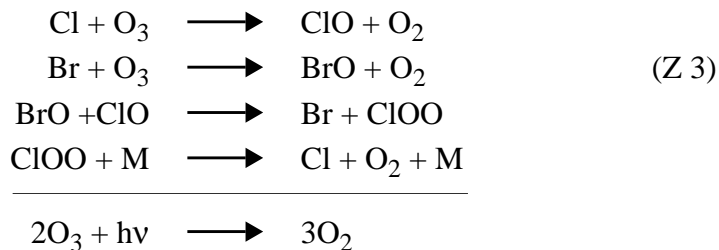
7. $\text{Br}_y = \text{BrONO}_2, \text{HBr}, \text{Br}_2, \text{Br}, \text{BrO}, \text{BrCl}$ und HBr

schungsverhältnis von Br_y angenommen. Messungen (Salawitch et al., 2004, und Referenzen dort) legen nahe, dass insbesondere in der tropischen Troposphäre ein Mischungsverhältnis von 4-8 pptv Br_y anzunehmen ist. Als Quelle dienen kurzlebige Bromverbindungen aus der Tropopausenregion, die in die unterste Stratosphäre eingemischt werden.

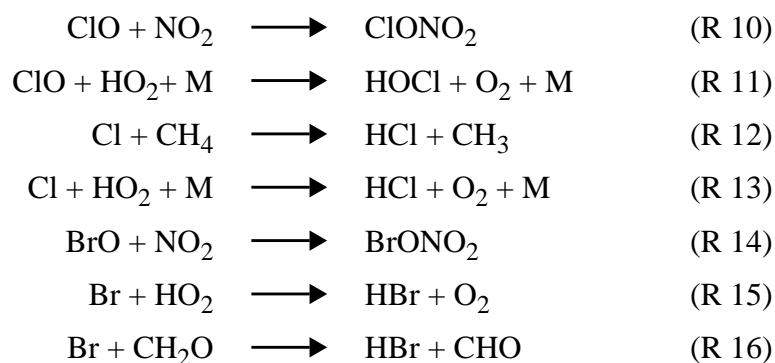
Der Ozon-Abbauzyklus nach Molina und Rowland (1974) mit Chlor als Radikal sieht wie folgt aus:



Brom ist nicht in der Lage, einen Zyklus wie Z2 zu durchlaufen. Damit das Brom regeneriert werden kann, bedarf es ClO wie in Zyklus Z3 gezeigt ist.



Die größten Auswirkungen der Chlor/Brom Chemie treten unter normalen stratosphärischen Bedingungen in der oberen Stratosphäre und über den Tropen auf, wo die harte UV-Strahlung ganzjährig hoch ist. Da sich allerdings das Konzentrationsmaximum des Ozons in der unteren Stratosphäre befindet, bleibt dieses davon unberührt. Lägen Chlor und Brom permanent in ihren aktiven Formen vor, würde der Ozonabbau weitaus größere Folgen auf das Ozon der mittleren Breiten haben als beobachtet. Unter stratosphärischen Bedingungen liegen 90-95% des Chlors in den Reservoirgasen Chlornitrat (ClONO_2), das durch die Reaktion von NO_2 mit ClO nach Reaktion (R10) gebildet wird, und Chlorwasserstoff (HCl) vor. HCl kann aus Cl entweder in der Reaktion mit Methan (CH_4) oder dem Hydroperoxid (HO_2) Radikal nach Reaktion (R12) und Reaktion (R13) entstehen. Im Gegensatz zu HCl und ClONO_2 ist HOCl, Reaktion (R11), leicht photolysierbar. Br liegt zum größten Teil in aktiver Form als BrO vor und wenig in den Reservoirgasen BrONO_2 (siehe Reaktion (R14)) und HBr (siehe Reaktionen (R15) und (R16)) (Solomon, 1999). Das Fehlen von ClO verhindert aber den raschen Ozonabbau über den Zyklus Z3.



Aus den Reservoirgasen kann Cl mittels des OH-Radikals oder durch Sonnenlicht ausgelöst werden, siehe auch Abschnitt 3.4.1.

Die weiteren Halogene Fluor und Jod tragen nicht zum Ozonabbau bei. Fluor kann, nachdem es aus den FCKW ausgelöst wurde, noch einige Zwischenprodukte durchlaufen, wird aber schnell in Fluorwasserstoff, HF, überführt (Holleman und Wieberg, 2000). Die Konzentration in der Stratosphäre steigt von 0,2 ppbv in einer Höhe von 20 km auf 35 ppbv in 35 km an (Sen et al., 1996). Aufgrund der starken H-F Bindung steht F danach nicht mehr zur Verfügung. HF kann als weitgehend chemisch inert betrachtet und so als passiver Spurenstoff genutzt werden. Da sich das Mischungsverhältnis eines passiven Spurenstoffes in erster Näherung nicht durch chemische Reaktionen ändert, kann das Verhältnis zwischen einem passiven Spurenstoff und einem reaktiven Spurengas, z.B. Ozon, zur Quantifizierung von chemischen Prozessen herangezogen werden (Proffitt et al., 1990, 1993), siehe Kapitel 4. Darüber hinaus kann die Verteilung eines passiven Spurenstoffes zur Beschreibung von dynamischen Prozessen in der Stratosphäre genutzt werden (Dessler et al., 2000).

Solomon et al. (1994) spekulierten über die Wirkung von Jod auf den Ozonabbau. Aufgrund der immer schwächer werdenden Kohlenstoff-Halogen Bindung mit Zunahme der Masse des Halogens sollten bereits kleinste Mengen Jod eine große Auswirkung auf die Ozonkonzentration haben. Mit Hilfe eines bodengebundenen *Differentiellen Optischen Absorptionsspektrometers* (DOAS) in Spitzbergen konnte das Mischungsverhältnis von Jodoxid, IO, in der Stratosphäre von Wittrock et al., (2000) zu ~0,1 pptv bestimmt werden. Dies wurde von Bösch et al. (2003) mit in-situ Messungen über Kiruna (67,9° N, 21,1° O) bestätigt. Das Jod in der Stratosphäre ist natürlichen Ursprungs und stammt aus Meersalz bzw. wird von marinen Organismen freigesetzt. Aufgrund von Modellläufen kommen Bösch et al. (2003) zu der Schlussfolgerung, dass selbst unter den kalten Bedingungen des Polarwirbels 0,1 pptv IO zu einem Ozonverlust von maximal 1% in der Stratosphäre führt.

3.3 Aerosole in der Stratosphäre

Abgesehen von der vorgestellten Gasphasenchemie spielen heterogene Reaktionen eine wichtige Rolle bei der Zerstörung des stratosphärischen Ozons. Heterogenen Reaktionen finden auf der Oberfläche von Aerosolpartikeln statt, die die Halogenradikale aus ihren Reservoirgasen auslösen.

3.3.1 Das stratosphärische Hintergrund-Aerosol

Die Junge Schicht befindet sich zwischen der Tropopause und 25 km Höhe und bezeichnet eine Aerosolschicht aus flüssigen Schwefelsäuretröpfchen. Quellen dieses Aerosols sind Verbindungen wie COS und SO₂, die in der Troposphäre von marinen Organismen gebildet oder bei Vulkanausbrüchen freigesetzt und bis in die Stratosphäre geschleudert werden. Dort werden sie zu Schwefelsäure aufoxidiert. Beim Ausbruch des Mt. Pinatubo 1991 gelangten Partikel bis in die Stratosphäre, woraufhin eine bis zu 30-mal höhere stratosphärische Aerosolteilchenoberfläche gemessen wurde (Dessler, 2000). Die Erhöhung der Aerosolteilchen hatte in den darauf folgenden polaren Wintern einen Einfluss auf die Bildung von polaren stratosphärischen Wolken und damit auch auf die Ozonzerstörung. Die Umlaufzeit der Brewer-Dobson Zirkulation wird mit ca. 5 Jahren angegeben. In 2000 kann man deshalb von einer Atmosphäre ausgehen, die frei von Vulkanaerosolen ist.

3.3.2 Polare Stratosphärische Wolken

Als polare stratosphärische Wolken (engl. Polar Stratospheric Clouds, PSCs) werden Wolken in der Stratosphäre bezeichnet, die sich im Polarwirbel aufgrund der dort herrschenden tiefen Temperaturen bilden können. Man unterscheidet PSCs nach den Eigenschaften ihrer Partikel. Sie bestehen aus festen und/oder flüssigen Teilchen, die im Wesentlichen aus Wasser, Salpetersäure (HNO_3) und Schwefelsäure (H_2SO_4) bestehen. Wolken, deren Partikel oberhalb der Existenztemperatur von Wassereis stabil sind, werden als Typ Ia und Ib bezeichnet. Wolken aus Partikeln, die ausschließlich unterhalb der Existenztemperatur von Wassereis stabil sind, werden PSC Typ II genannt.

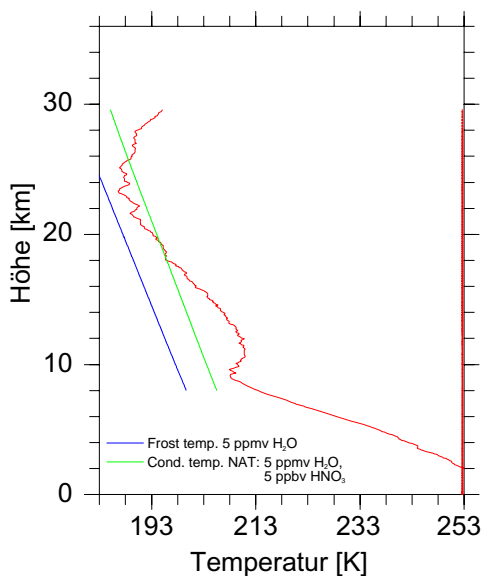


Abbildung 3.2: Höhenabhängige Existenztemperaturen für T_{NAT} (grüne Linie) und T_{Eis} (blaue Linie). In rot ist das Temperaturprofil des Sondaufstiegs am 16.12.2002 über Ny-Ålesund gezeigt.

PSC Typ Ia beschreibt Wolken, deren Partikel aus festen Salpetersäure/Wasser Gemischen bestehen. In-situ Untersuchungen haben gezeigt, dass es sich dabei um Salpetersäuretrihydrat, $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ (engl. Nitric Acid Trihydrate, NAT), handelt (Voigt et al., 2000). Die höhenabhängige Kondensationstemperatur für festes $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ T_{NAT} , berechnet nach Hanson und Mauersberger (1988), ist in Abbildung 3.2 als grüne Linie eingezeichnet. Zur Berechnung ist ein festes Mischungsverhältnis von 4,6 ppmv H_2O angenommen und ein mittleres polares HNO_3 Profil des Januars 1979 verwendet worden. Die rote Kurve gibt das korrespondierende Temperaturprofil eines Sondaufstiegs wieder.

Typ Ia Wolken können in Teilchenzahl und -größe variieren. Sind die Wolken aus kleineren Teilchen (Durchmesser $< 1\text{-}6 \mu\text{m}$) aufgebaut, so haben diese in der Regel eine hohe Anzahldichte (ca. $10^1\text{-}1 \text{ cm}^{-3}$). Am anderen Ende des Teilchenspektrums stehen Wolken aus wenigen Partikeln ($10^5\text{-}10^3 \text{ cm}^{-3}$) mit großem Durchmesser ($10\text{-}20 \mu\text{m}$), so genannte NAT-Rocks. Diese Partikel sind schwer genug, um aus der Luftschicht zu sedimentieren und den gebundenen Stickstoff irreversibel zu entfernen (Fahey et al., 2001). Dieser Vorgang wird Denitrifizierung genannt.

Für die Bildung von NAT-Teilchen ging man bisher davon aus, dass sich zunächst Eiswolken bilden müssen, auf deren Partikeloberfläche NAT ausfriert. Dies würde bedeuten, dass eine Denitrifizierung mit einer Dehydrierung einhergeht, d.h. mit der irreversiblen Entfernung von Wasser aus Höhenschichten aufgrund von Sedimentation. Dies ist jedoch nicht der Fall wie z. B. Irie et. al (2004) gezeigt haben.

Ob es sich bei dem Bildungsmechanismus der NAT-Teilchen letztlich um einen homogenen oder heterogenen Nukleationsmechanismus handelt, oder ob beide Arten der Nukleation existieren, ist bislang nicht geklärt. Eine Möglichkeit der Partikelbildung ist auf Temperaturfluktuationen z.B. in Lee-Wellen zurückzuführen. Solche Lee-Wellen werden beim Überströmen der Luft von Gebirgen induziert. Bei den ausgelösten Wellen handelt es sich um Schwerewellen, deren rücktreibende Kraft die Gravitation ist. Sie bilden sich an bzw. hinter Bergrücken und breiten sich bis in die Stratosphäre und darüber hinaus aus. Aufgrund der abnehmenden Dichte der Atmosphäre wird die Amplitude bei der vertikalen Ausbreitung immer größer, so dass diese bis auf 1-1,5 km anwachsen kann. Die Temperaturstörung kann mit 1 K/100 m abgeschätzt wer-

den, was zu Unterschieden von bis zu 15 K zur umgebenden synoptischen Temperatur führen kann. Aufgrund dieser raschen Abkühlung ist das System weitab vom Gleichgewichtszustand. So bilden sich schnell Nukleationskeime, die zur Bildung von Eis- und schließlich NAT-Partikeln führen (Carslaw et al., 1998, 1999). Auch wenn diese Temperaturstörungen lokal begrenzt sind, können sie einen großen Effekt auf die polare Chemie haben. Wenn solche Lee-Wellen Bedingungen über einige Tage stabil sind, ist die Luftmasse beträchtlich, die diese Region durchströmt und eine Aktivierung der Chlorverbindungen an den Partikeln erfährt (Carslaw et al., 1998).

PSC Typ Ib sind Wolken aus flüssigen Tröpfchen, die aus einem Drei-Stoffgemisch von HNO_3 , H_2O und H_2SO_4 bestehen und unterkühlte ternäre Lösungen (engl. *Supercooled Ternary Solution*, STS) genannt werden. Diese bilden sich aus dem Hintergrundaerosol unter Aufnahme von HNO_3 und H_2O bei Unterschreiten der Bildungstemperatur von STS, die 3-4 K niedriger als die T_{NAT} Existenztemperatur liegt (Carslaw et al., 1994; Tabazadeh et al., 1994). Mit abnehmender Temperatur wird verstärkt H_2O und HNO_3 in das Tröpfchen aufgenommen. Dabei kann der HNO_3 Gehalt auf ca. 40% steigen, während der H_2SO_4 Gehalt auf ca. 2% zurückgeht (Tabazadeh et al., 1994).

PSC Typ II bezeichnet Wolken aus festen Wassereispartikeln. Die blaue Linie in Abbildung 3.2 gibt den Eisfrostpunkt T_{Eis} an, d.h. die Temperatur, bei der der vorhandene Wasserdampf dem Sättigungsdampfdruck über Eis entspricht. T_{Eis} wurde nach der Parametrisierung von Marti und Mauersberger (1993) berechnet. Im Bereich der unteren Stratosphäre können Wassereiskristalle bis zu einer Temperatur von ca. 190 K existieren. In Laborstudien hat man gefunden, dass sie sich jedoch erst ca. 3-4 K unterhalb von T_{Eis} bilden (Koop et al., 2000).

Das Vorkommen und die Art der beobachteten PSCs in der Arktis und Antarktis unterscheiden sich, wie man anhand der Temperaturen im jeweiligen Wirbel erwarten kann (siehe Abbildung 2.3). Müller et al. (2004) veröffentlichten einen Vergleich von Lidarmessungen, die an der arktischen Station Ny-Ålesund (78,9° N, 11,9° O) und der antarktischen Station McMurdo (77,9° S, 166,7° O) gesammelt wurden. Über Ny-Ålesund werden vorwiegend Gemische von PSC Typ Ia und Ib detektiert. Bis zum Winter 2004/2005 wurden PSCs Typ II in der Arktis nur in Lee-Wellen induzierten Temperaturstörungen beobachtet, die es hauptsächlich im Bereich des skandinavischen Gebirges gibt. Im Januar 2005 wurde die erste PSC Typ II über Ny Ålesund detektiert, die sich aufgrund von synoptischen tiefen Temperaturen gebildet hat (persönliche Mitteilung M. Müller, 2005). Über der antarktischen Station McMurdo findet man in erster Linie feste Teilchen des Typs Ia, die einen konstanten Hintergrund während des gesamten Winters bilden (Adriani, 2004). Allerdings werden, obwohl der antarktische Wirbel kalt genug ist, nur selten PSCs des Typs II über der Station McMurdo beobachtet.

Eine flächendeckende Beobachtung von PSCs in den Polarwirbeln ist schwierig, und nur über Satelliten möglich. Während die bodengebundenen Lidarsysteme vom Wetter in der Troposphäre abhängig sind und bei Wolkenbedeckung nicht messen können, sind die Satellitenmessungen stark breitenabhängig.

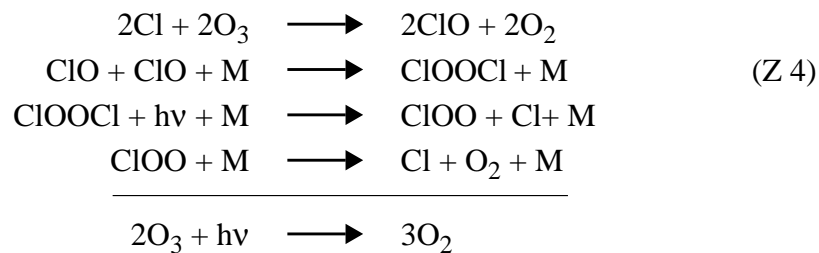
Da in erster Näherung die Temperatur der limitierende Faktor zur Bildung von PSCs in der Stratosphäre ist, kann man das Potential eines Polarwirbels Reservoirgase an den Oberflächen von PSCs in leicht photolytisch spaltbare Zwischenprodukte umzuwandeln, erhalten, indem man die Flächen bzw. das Volumen berechnet, in denen die Existenztemperatur von T_{NAT} und T_{Eis} unterschritten werden. Schulz (2000) konnte nachweisen, dass die Temperaturgeschichte der

Luftmassen wichtig und ein signifikanter Ozonabbau immer dann zu erwarten ist, wenn innerhalb eines Zeitraums von ca. 10 Tagen das Luftpaket Temperaturen niedriger als T_{NAT} erfahren hat.

3.4 Die Ozon-Chemie im Polarwirbel

Als Chubachi (1982) und Farman et al. (1985) die großräumige Ozonreduktion über der Antarktis entdeckten, war zunächst unklar, wie es dazu kommen konnte. In Kapitel 2 wurde bereits auf die besonderen meteorologischen Verhältnisse der Polarwirbel eingegangen, und im vorhergehenden Abschnitt die polaren Stratosphärenwolken erläutert, die sich bei geringen Temperaturen im Polarwirbel bilden.

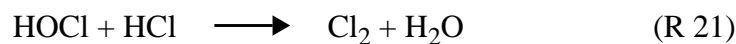
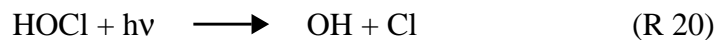
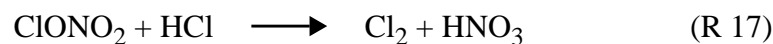
Der Zyklus Z2 kann den starken polaren Ozonabbau in der unteren Stratosphäre nicht erklären, da hierfür molekularer Sauerstoff nötig ist, der in dieser Höhe der limitierende Faktor ist. Molina et al. veröffentlichten 1987 den Dimer-Zyklus, der das Cl Radikal in Abwesenheit von atomarem Sauerstoff regeneriert:



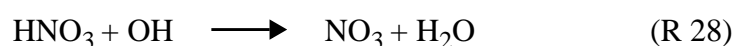
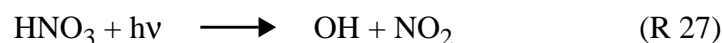
Nachts liegt das Gleichgewicht auf der Seite des Dimers ClOOCl und wird dann über die thermische Zersetzung des Dimers bestimmt. Von Hobe et al. (2004) haben eine neue Gleichgewichtskonstante für die thermische Zersetzung des Dimers aus gleichzeitigen in-situ Messungen des Dimers und des Monomers während des VINTERSOL/SOLVE II Winters 2002/2003 ermittelt, die einen größeren Anteil des Dimers in das Monomer verschiebt, als nach der bisherigen Theorie angenommen wurde. Da die Photolyse des Dimers bei stratosphärischen Temperaturen tagsüber dominiert ist, wirkt sich die neue thermische Gleichgewichtskonstante nur gering auf den Ozonabbau aus. Die Geschwindigkeit der Photolyse ist von der Photolysekonstante des Dimers abhängig. Diese Photolyskonstante enthält u.a. die Wellenlänge des einfallenden Lichtes (λ) und den Absorptionsquerschnitt (σ_{ClOOCl}) des Dimers. Es existieren mehrere Messungen des Absorptionsquerschnittes des Dimers z. B. von Burkholder et al. (1990) und Huder und DeMoore (1995). Stimpfle et al. (2004) haben aus simultanen Messungen des Monomers und Dimers während des arktischen Winter 1999/2000 und aus den verschiedenen Absorptionsquerschnitten neue Photolysekonstanten in Abhängigkeit vom Sonnenzenithwinkel berechnet. Bezieht man die unterschiedlich gemessenen Konstanten für die Bildung des Dimers ein, so ergibt sich, dass das gemessene Verhältnis von $[\text{ClOOCl}]/[\text{ClO}]^2$ nur vernünftig reproduziert werden kann, wenn man die Photolysekonstante signifikant vergrößert. War bisher die Photolyse der limitierende Schritt von Zyklus Z4, so führt diese Änderung zu einer Beschleunigung des Umsatzes des Zyklus und damit zu einem stärkeren Ozonabbau. Diese Änderung hat eine große Auswirkung auf die schlechte Reproduzierbarkeit der Matchabauraten durch chemische Modelle, wie bereits in der Einleitung erwähnt wurde.

3.4.1 Heterogene Chemie

Das Herauslösen von Chlor aus den Reservoirverbindungen in leicht photolytisch spaltbare Verbindungen mit anschließender Photolyse wird als Chloraktivierung bezeichnet. Die dabei entstehenden Verbindungen werden als ClO_x ⁸ zusammengefasst. In der Gasphase verläuft der erste Teilschritt der Chloraktivierung über das OH-Radikal. Dies stellt unter normalen stratosphärischen Bedingungen den limitierenden Schritt in der Ozonzerstörung dar. Im kalten Polarwirbel kann jedoch auf der Oberfläche der PSCs eine heterogene Chemie ablaufen, die die Reservoirgase viel schneller in leicht spaltbare Zwischenprodukte überführt, als es die Gasphasenchemie schafft. Die Reaktionsraten auf den Wolken sind dabei vom Typ der Wolkenteilchen abhängig. Flüssige Wolkentröpfchen (PSC Typ Ib) aktivieren stärker als feste Teilchen (Ravishankara und Hanson, 1996).



Reaktion (R17) zeigt eine wesentliche Reaktion, die auf PSC-Oberflächen ablaufen kann. Dabei werden zwei Reservoirgase, ClONO_2 und HCl , in Cl_2 umgewandelt. Dieses wird photolytisch in zwei Cl -Radikale gespalten (siehe Reaktion (R18)) die dann in den Zyklen Z2-Z4 aktiv werden können und katalytisch Ozon zerstören. Die Reaktionskoeffizienten der Reaktionen (R17) und (R19) steigen bei niedrigen Temperaturen, da dann die Löslichkeit von Wasser und HCl in den Wolkenpartikeln exponentiell ansteigt. Damit verkürzt sich die Lebensdauer von Chlornitrat. Unterschreitet die Lebensdauer von Chlornitrat einen Tag, so spricht man von einer effektiven Chloraktivierung (Del Negor et al., 1997). Reaktion (R19) und Reaktionen (R21) bis (R23) zeigen weitere heterogene Reaktionen, bei denen Chlor- und Brom-Spezies an PSC-Oberflächen umgewandelt werden. Die entstandenen Endprodukte können dann analog zu den Reaktionen (R18) und (R20) in Chlor- oder Brom-Radikale umgewandelt werden. Die Reaktionen (R24) bis (R26) zeigen Reaktionen, die NO_x ⁹ in das relativ langlebige HNO_3 überführen. HNO_3 kann durch Sonnenlicht oder das durch OH wieder in NO_x überführt werden (siehe R27 und R28).



8. $\text{ClO}_x = \text{Cl}, \text{ClO}$ und Cl_2O_2

9. $\text{NO}_x = \text{NO}, \text{NO}_2, \text{NO}_3$ und N_2O_5

Bei niedrigen Temperaturen hingegen binden die festen und flüssigen Partikel des Aerosols HNO_3 und entziehen es so der Gasphase. Diesen Vorgang nennt man Denoxifizierung. Das HNO_3 kann nun nicht mehr photolytisch gespalten werden und das aktive Chlor in sein Reservoirgas ClONO_2 überführen. Unter Umständen wachsen die festen Partikel und werden so schwer, dass sie sedimentieren. Da die Deaktivierung des Chlors in HCl durch Reaktion (R12) und Reaktion (R13) wesentlich langsamer ist, kann der Ozonabbau in denitrifizierten Luftschichten länger anhalten. Jedes Jahr findet in der Antarktis großräumige Denitrifizierung über einen Höhenbereich von ca. 10 km statt, die zu einem vermehrten Ozonabbau von ca. 10% führt, wohingegen der Arktis nur selten Denitrifizierung stattfinden kann (WMO, 2003). In der Arktis wurde für die kalten Winter, z.B. 1999/2000, eine Denitrifizierung nachgewiesen (Fahey et al. 2001; Popp et al., 2001), sowie eine verstärkte Ozonzerstörung nach erfolgter Denitrifizierung im Winter 1995/1996 (Rex et al., 1997b).

In der Arktis findet aufgrund der schwächeren Denitrifizierung eine dauernde Deaktivierung des Chlors durch das NO_2 statt. Das Gleichgewicht zwischen ClONO_2 und HCl stellt sich dann während des Sommers wieder ein. Aufgrund der starken Denitrifizierung wird in der Antarktis das Ozon komplett zerstört, bevor die langsame Überführung des aktiven Chlors in das HCl beginnt. Nach dem Zusammenbruch des Wirbels im Frühjahr findet eine Normalisierung des NO_x Haushalts in der unteren Stratosphäre statt, und die Gleichgewichtskonzentrationen von ClONO_2 und HCl stellen sich ein.

Auch Dehydrierung, findet jedes Jahr in der Antarktis in einem Höhenbereich von 10-20 km statt (Nedoluha et al., 2000). Die arktische Stratosphäre ist hingegen in der Regel zu warm für eine solch starke Dehydrierung. Allerdings konnte das Satellitenexperiment "Improved Limb Atmospheric Spectrometer" (ILAS) im Winter 1996/1997 Dehydrierung in einer 1-2 km dicken Schicht detektieren (Pan et al., 2002). Dehydrierung kann den Ozonabbau abmildern, da weniger Wasser für die PSC Partikelbildung zur Verfügung steht und die Reaktionsraten der heterogenen Reaktionen mit abnehmender Luftfeuchtigkeit kleiner werden (Portmann et al., 1996; Brasseur et al. 1997). Allerdings hat vor einer Dehydrierung fast immer eine Denitrifizierung eingesetzt, so dass eine Dehydrierung in der Regel ebenfalls ein Zeichen für starken Ozonabbau ist.

3.5 Die vertikale Ozonverteilung

Aus der allgemeinen Gasgleichung (2.1) ergibt sich für den Partialdruck des Ozons $P(\text{O}_3)$, bzw. jedes anderen Gases zu

$$P(\text{O}_3) = RT\rho \quad (3.1)$$

Als gängige Messgrößen für Gase haben sich das Mischungsverhältnis $X(\text{O}_3)$ und die Konzentration $[\text{O}_3]$ eingebürgert. Dabei gibt das Mischungsverhältnis $X(\text{O}_3)$ das Verhältnis von Ozonmolekülen zu allen anderen Luftteilchen wieder, während die Konzentration das Vorkommen in einem bestimmten Volumen beschreibt.

$$X(\text{O}_3) = \frac{[\text{O}_3]}{\rho_n} = \frac{P(\text{O}_3)}{P} \quad (3.2)$$

mit ρ_n = Anzahldichte der Luft und P = Gesamtdruck.

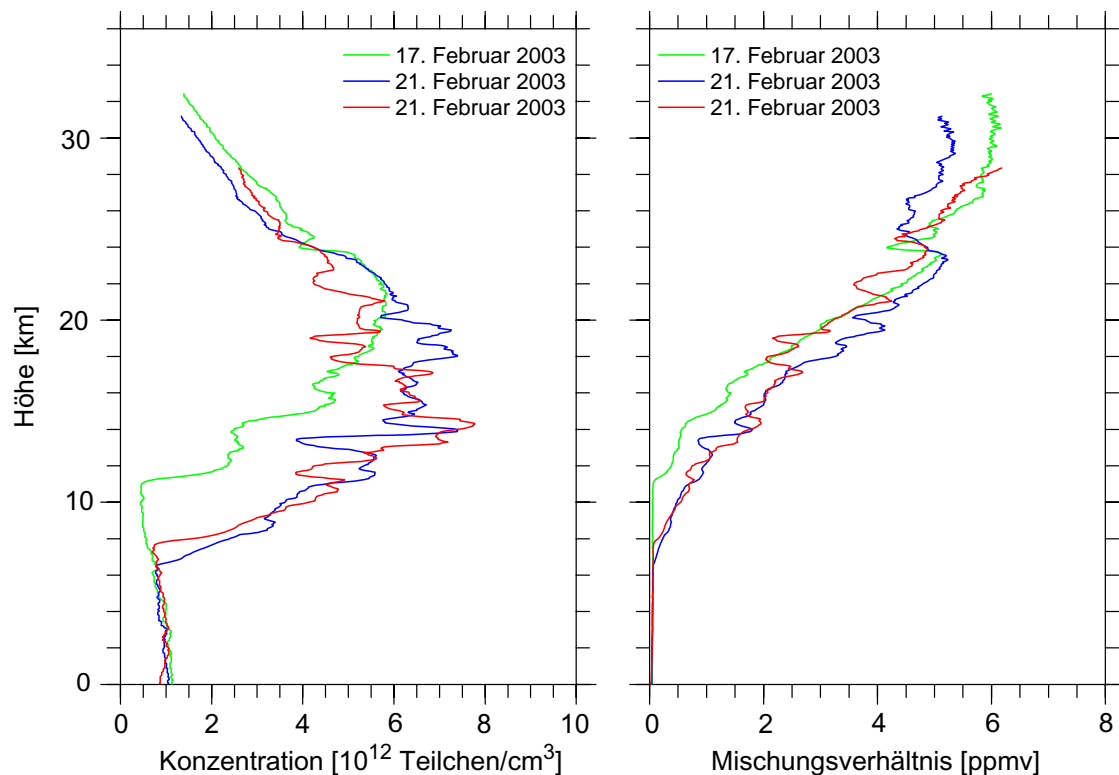


Abbildung 3.3: Ozonsondenaufstiege an der Koldewey in Ny-Ålesund. Grün: 17.02.03 außerhalb des Wirbels; blau und rot (21.02.03) liegen innerhalb des Polarwirbels. Dabei sind die Profile einmal als Konzentration (a) und Mischungsverhältnis (b) aufgetragen.

Bei $X(\text{O}_3)$ handelt es sich dabei um eine Erhaltungsgröße. In Abbildung 3.3 sind die Konzentration (a) und das Mischungsverhältnis (b) von drei Ozonprofilen gezeigt, die zwischen dem 17. und 21. Februar 2003 an der Station Ny-Ålesund gemessen wurden. Der Ozongehalt der Troposphäre ist gering. Die Tropopause erkennt man am starken Anstieg der Konzentration bzw. des Mischungsverhältnisses, das in hohen Breiten üblicherweise bei ca. 8 km liegt. Während es in der Konzentration ein Maximum zwischen 15-20 km gibt, nimmt das Mischungsverhältnis stetig bis ca. 50 km nach oben zu. In grün ist ein Profil vom 17. Februar 2003 gezeigt, als Ny-Ålesund nicht unter dem Wirbel lag. In blau und rot sind zwei Profile gezeigt, die am 21. Februar 2003 um 11 und 23 Uhr innerhalb des Polarwirbels aufgenommen wurden. Man erkennt, dass die gemessenen Profile über einer arktischen Station stark variieren können. Zum Ableiten des polaren Ozonabbaus sollten nur Profile verwendet werden, die innerhalb des Polarwirbels liegen. Aber selbst dann führt der direkte Vergleich einzelner Profile nicht zur Bestimmung von chemischem Ozonabbau. In ca. 18 km Höhe bringt der direkte Vergleich des roten und blauen Profils eine Ozonreduktion von 1 ppmv. Diese Reduktion ist auf die Dynamik zurückzuführen, die eine Inhomogenität im Ozonfeld der polaren Stratosphäre erzeugt. Das Signal eines chemischen Ozonabbaus auf kleinen Zeitskalen (Stunden bis Tage) ist klein gegenüber der dynamisch verursachten Variabilität des Ozons über der Arktis. Für den frühen antarktischen Wirbel gilt dasselbe, auch wenn hier der dynamische Einfluss auf die Verteilung des Ozons im Wirbel geringer ist. Kommt es zu Einmischungsprozessen von externer Luft in den Wirbel, so wird bis zu einer Höhe von ca. 24 km ozonärmere Luft in den Wirbel gemischt, darüber dann ozonreichere.

3.6 Polare Ozonverteilung

3.6.1 Die Ozonverteilung über der Arktis

Die Dicke der Ozonschicht wird in Dobson Units (DU) angegeben. Dabei handelt es sich um die vertikale Integration der Ozonkonzentration nach Gleichung (3.3).

$$N_{O_3} = \int_0^{\infty} [O_3] dz = \int_0^{\infty} (X(O_3) \cdot \rho_n) dz \quad (3.3)$$

Würde die gesamte Ozonsäule auf Standarddruck und Temperatur komprimiert, ergäbe sie eine Schicht von ca. 3-4 mm Dicke. 1 DU entspricht 0,01 mm Schichtdicke unter Standardbedingungen (1013 hPa, 298 K). Die Säulendicke wird bereits seit 1920 mit Hilfe von Dobson-Spektrometern ermittelt (Dobson, 1929).

In Abbildung 3.4 sind Daten vom Satellitenexperiment “Total Ozone Mapping Spectrometer” (TOMS) auf der “Plattform Earth Probe” vom 17. März 2003 gezeigt. TOMS misst die Gesamt-ozonsäulendichte. Das Datum entspricht dem Ende der arktischen Match-Kampagne. Man erkennt einen Bereich über Nordeuropa und der Norwegischen See, in dem eine Gesamt-ozonsäule von ca. 240-260 DU beobachtet wird. Diese Fläche stimmt mit dem Polarwirbel überein. Der geringe Ozongehalt im arktischen Polarwirbel ist jedoch vor allem auf dynamische Effekte zurückzuführen, denn der chemische Ozonabbau fiel in diesem Jahr für arktische Verhältnisse moderat aus, wie in Kapitel 6 gezeigt wird. Eine Ozonsondierung aus Ørland (63,4° N, 9,2° O), die an diesem Tag in den Wirbel gestartet wurde, zeigt eine Tropopausenhöhe von ca. 14 km. Die hohe Tropopause deutet auf ein Hochdruckgebiet in der Troposphäre hin. Das führt zu einer relativen Verkleinerung der ozonreichen Luftsäule und damit zu niedrigen Ozonwerten in der gemessenen Säule. Hinzu kommt, dass bereits während des gesamten Winters 2002/2003 die Ozonsäulendicke im Wirbel niedrig gewesen ist. So wurden ozonarme Luftmassen im November/Dezember in den Wirbel eingeschlossen und bis in das Frühjahr hinein im isolierten Wirbel konserviert. Vom Bereich des Polarwirbels abgesehen beträgt die Gesamt-ozonsäule der hohen und mittleren nördlichen Breiten etwa 400-500 DU, was dem klimatologischen Mittel zu diesem Zeitpunkt entspricht. Im Sommer misst man Werte um 300-400 DU.

Die lokale Schichtdicke über einer Ozonsondenstation kann aus der vertikalen Integration einer Ozonsonde nach Gleichung (3.3) abgeschätzt werden. Dies ist in Abbildung 3.6 für die Arktis und in Abbildung 3.8 für die Antarktis geschehen. Dabei wurden nur Sonden verwendet, die mindestens 25 km hoch gestiegen sind. Das darüber liegende Ozon trägt nur noch zu einem kleinen Teil zum Betrag der Gesamt-ozonsäule bei und kann extrapoliert werden. In Abbildung 3.6 sind die Ozonsäulendichten der Sondaufstiege, die in den Jahren 1991-2005 an der Station Ny-Ålesund durchgeführt wurden, gezeigt. Jede Messung ist mit einem Kreuz vertreten. Von August bis Mitte November ergibt sich eine kompakte Verteilung der gemessenen Werte um ca. 300 DU. Ab Mitte November nimmt die Dicke der Ozonsäule zu. Im Februar/März wird das Maximum der Ozonsäulendicke von ca. 500 DU gemessen. Hervorgehoben ist das Jahr 1999/2000 mit grünen Kreuzen. In diesem Winter konnte nur ein schwacher Anstieg der Ozonsäule gemessen und der bisher stärkste chemische Ozonabbau mit der Match-Methode nachgewiesen werden (Rex et al., 2002). Da ein ungestörter und kalter Polarwirbel mit einer geringeren dynamischen Aktivität in der Hemisphäre einhergeht, sind die geringen Ozonsäulenwerte einerseits auf den geringeren Ozontransport in hohe Breiten und andererseits auf den chemischen Ozonabbau zurückzuführen.

TOMS

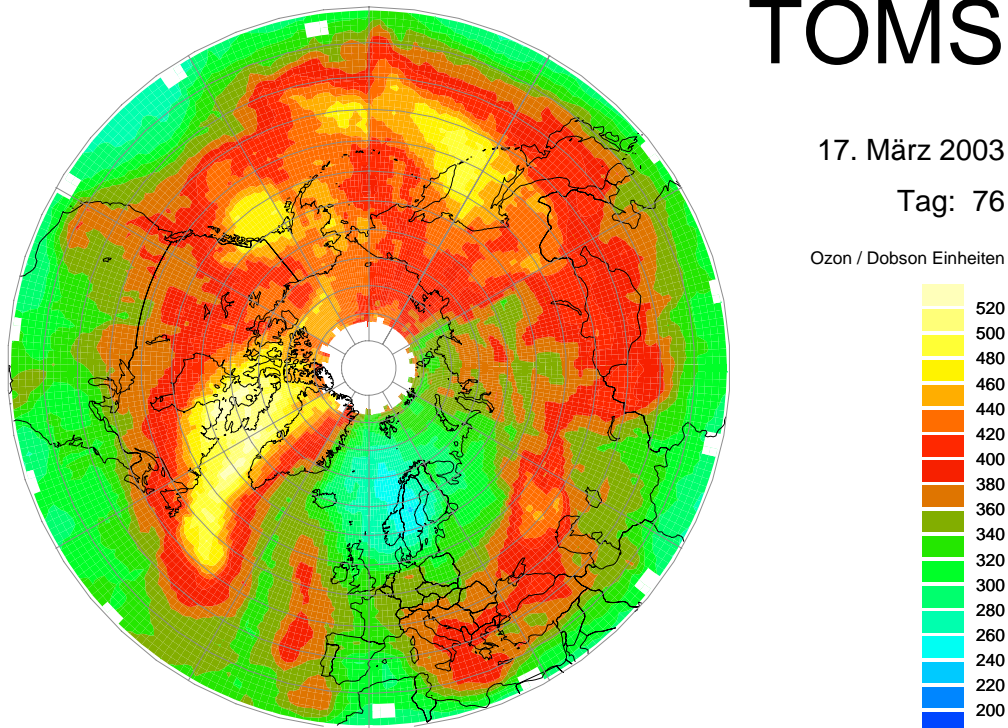


Abbildung 3.4: TOMS Daten des Gesamt Ozons über der Nordhemisphäre. Der Greenwich Meridian zeigt nach unten. Die Daten wurden vom "Ozone Processing Tema" der NASA zur Verfügung gestellt (<http://toms.gsfc.nasa.gov>) und über das NILU verteilt.

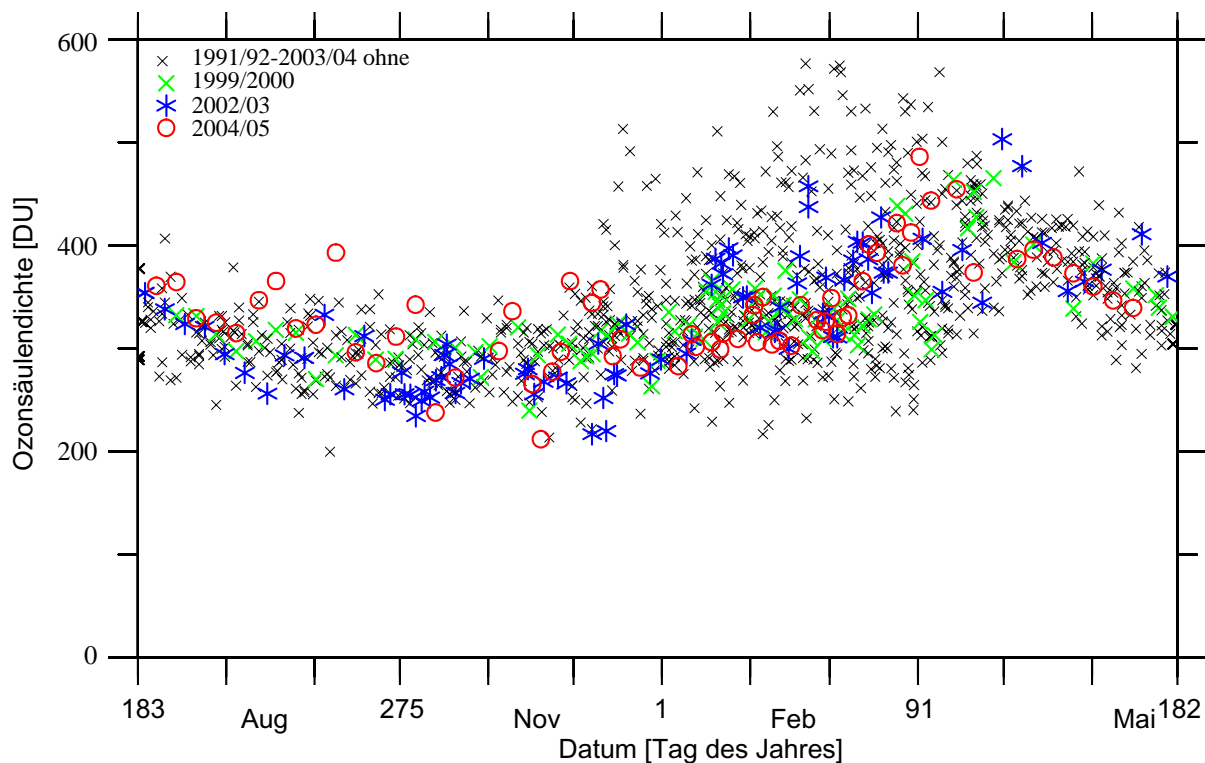


Abbildung 3.6: Berechnete Ozonsäulendichte aus den Sondaufstiegen an der Koldewey Station für den Zeitraum 1991 bis heute. Die Jahre 1999/2000 sind als grüne Kreuze, die Jahre 2002/2003 als blaue Sterne und das aktuelle Jahr in roten Kreisen hervorgehoben.

Mit blauen Kreuzen ist der Winter 2002/2003 gekennzeichnet. Dieser Winter wird ausführlich in Kapitel 6 besprochen. In roten Kreisen ist das aktuelle Jahr dargestellt, in dem der Polarwirbel über einen längeren Zeitraum ungewöhnlich kalt und stabil war. Nun muss abgewartet werden, ob es einen stärkeren Ozonabbau als im Winter 1999/2000 gegeben hat.

In Abbildung 3.7 ist die Ozonklimatologie über der Koldewey Station auf Spitzbergen zu sehen, die aus 1360 Ozonsondaufstiegen des Zeitraums 1991-2005 berechnet wurde. Jede Sondenmessung ist als schwarzer Strich am oberen Rand der Abbildung 3.7 dargestellt. Da Ny-Ålesund die meiste Zeit des Winters unter dem Zentrum des Polarwirbels liegt, kann diese Klimatologie als Beispiel für den Polarwirbel und die gesamte Arktis angesehen werden. Die Ozonkonzentration der einzelnen Höhenschichten ist farbig kodiert. Die Einhüllende für die Konzentration von $1,5 \cdot 10^{12}$ Moleküle/cm³ sinkt von ca. 36 km Anfang Juni auf ca. 30 km im November aufgrund der negativen Heizraten ab. Der Bereich für $4-5 \cdot 10^{12}$ Moleküle/cm³ bleibt an der oberen Grenze nahezu konstant bei 22 km, bis im März/April der Wirbel zusammenbricht, wonach ozonreiche Luft über Ny-Ålesund transportiert wird. In diesen Monaten steigt die Isolinie für $5 \cdot 10^{12}$ Moleküle/cm³ auf 24 km an. Auffällig ist der untere Rand dieser Isolinie, der von Mitte Juni bis Anfang Oktober bei 18 km liegt und dann langsam bis Anfang April auf ca. 12 km absinkt. Gleichzeitig steigt die maximale Ozonkonzentration in der Höhe von 17-18 km von $4-5 \cdot 10^{12}$ auf Werte um $5-6 \cdot 10^{12}$ Moleküle/cm³ und erreicht sein Maximum im Januar. Ein Zeichen vom chemischen Ozonabbau ist im klimatologischen Mittel nicht zu erkennen.

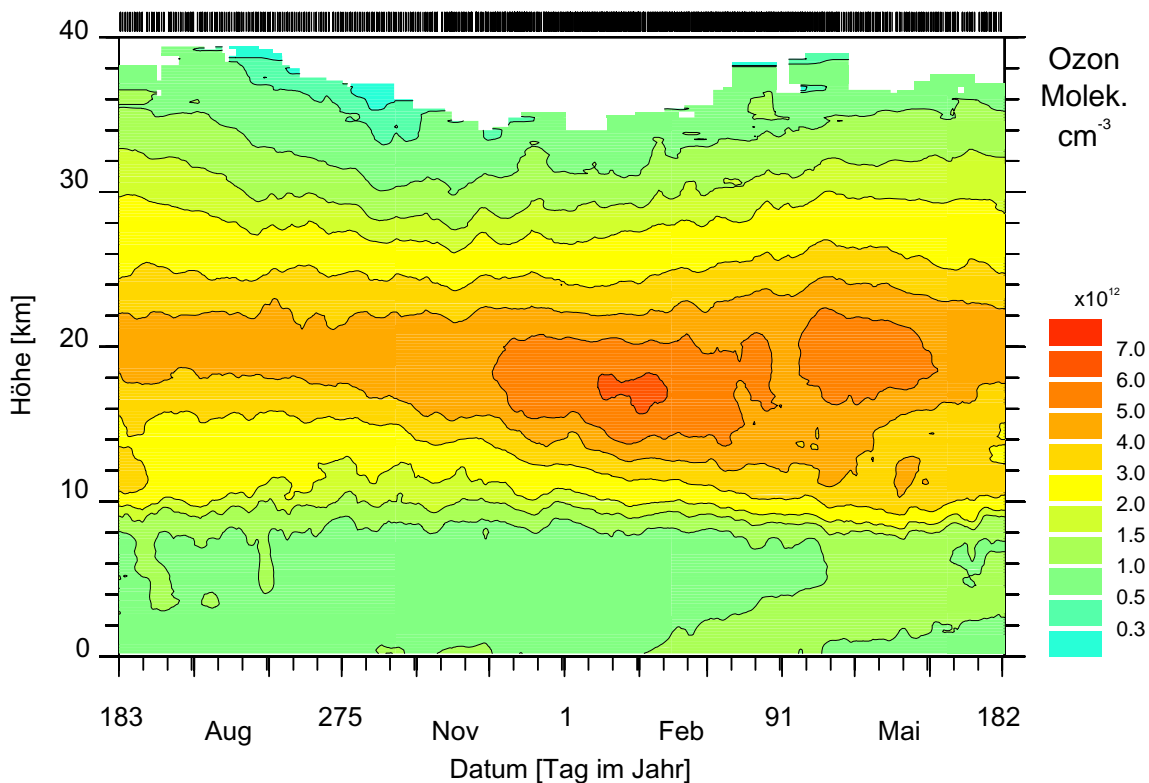


Abbildung 3.7: Höhen-Zeit-Konturdiagramm der Ozonkonzentration über Ny-Ålesund als Mittel der Jahre 1991-2005. Jede Einzelmessung ist als schwarzer Strich über der Graphik eingetragen.

3.6.2 Die Ozonverteilung über der Antarktis

In diesem Kapitel wird die Ozonschicht über der Antarktis beschrieben. Dazu wird die Ozonsonden-Zeitreihe der Neumayer Station genutzt, an der seit 1992 kontinuierlich Messungen durchgeführt werden und Daten, die während der Matchkampagne 2003 gewonnen wurden. Die Neumayer Station liegt an der Küste des antarktischen Kontinents, $70,7^{\circ}$ S, $351,7^{\circ}$ O, und liegt im klimatischen Mittel während der meisten Zeit seiner Existenz unter dem antarktischen Polarwirbel. Daher können die Daten als repräsentativ für den gesamten Polarwirbel angesehen werden.

Aufgrund der geringeren dynamischen Aktivität, wie schon in Kapitel 2 beschrieben, ist die Ozonschicht der Südhemisphäre weniger variabel. Die Säulendichte der Sondierungen an der Neumayer Station von 1992-2005 ist in Abbildung 3.8 gezeigt. Im Gegensatz zur Arktis ist die sich ergebende Kurve kompakter. Von Januar bis Ende August liegen die Werte um 280 DU. Danach erscheint kein Maximum im späten Winter und Frühjahr, sondern ein starkes Absinken der Ozonsäulendichte auf einen minimalen Wert von ~ 120 DU Ende September/Anfang Oktober. Gemäß den WMO Richtlinien spricht man ab einer Ozonsäulendichte unter 220 DU in der Antarktis von einem "Ozonloch". Im Jahr 2003, dem Jahr der antarktischen Matchkampagne, wurde die geringste Ozonsäulendichte über der Neumayer Station am 23.09.03 mit 116 DU erreicht, die Messungen sind als rote Kreise hervorgehoben. Wenn es ab November zu dynamisch bedingten Verdrängungen des Polarwirbels vom Pol kommt, ist es möglich, dass die Neumayer Station kurzzeitig außerhalb des Polarwirbels liegt und dann bedeutend höhere Ozonwerte gemessen werden (Abbildung 3.8).

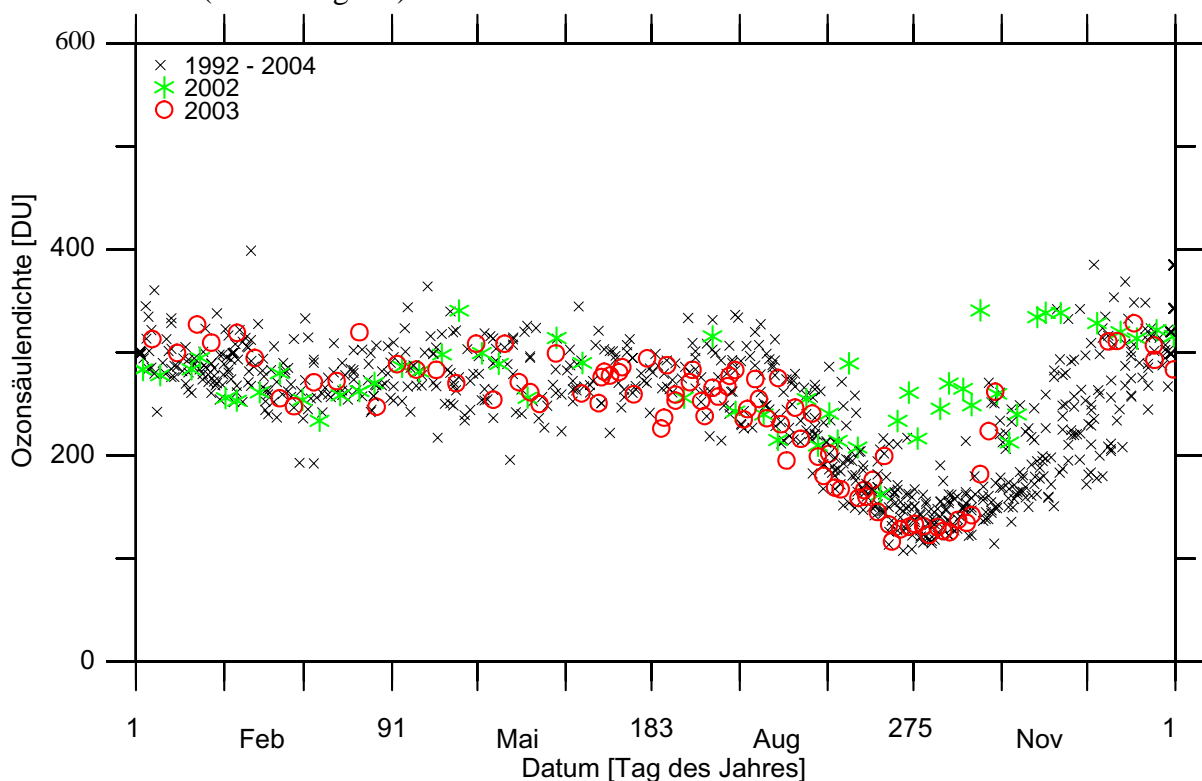


Abbildung 3.8: Wie Abbildung 3.6 für die Neumayer Station ($70,7^{\circ}$ S, $351,7^{\circ}$ O) für den Zeitraum von 1992 bis heute. Die Sondierungen bis 2001 und in 2004 sind in schwarzen Kreuzen zusammengefasst. Das Ausnahmejahr 2002 erscheint in grünen Kreuzen und 2003 ist in roten Kreisen dargestellt.

Die Regenerierung der Ozonschicht über der Antarktis erfolgt durch das Aufbrechen des Polarwirbels im Dezember. Die ozonarme Luft aus dem Polarwirbel vermischt sich mit ozonreicher Luft der mittleren Breiten. Anfang Januar wurden in allen bisherigen Jahren Werte um 280-300 DU gemessen.

In Abbildung 3.8 ist mit grünen Kreuzen das Jahr 2002 hervorgehoben. Wie bereits im Kapitel 2.5 diskutiert wurde, wurde der antarktische Polarwirbel 2002 durch eine große Stratosphären-erwärmung gestört. In Abbildung 3.11 sind TOMS Daten der Südhemisphäre vom 25. September 2002 zu sehen. Nutzt man Ozon als Indikator für den Wirbel, so erkennt man den geteilten Wirbel und dessen starke Verdrängung vom Antarktischen Kontinent. Ausgelöst wurde das Ereignis von ungewöhnlich starken quasi-stationären Wellen. Bereits im Oktober 2002 erfolgte die Umstellung auf die Sommerzirkulation in der Stratosphäre (Krüger et al., 2005), so dass ab Mitte November 2002 die Ozonsäulendichte über der Neumayer Station auf ungestörtem Niveau war und der Ozonabbau in diesem Jahr insgesamt geringer ausfiel. Abbildung 3.9 zeigt Ozonsondenprofile, die während der antarktischen Match-Kampagne 2003 an den Stationen Rothera (67,6° S, 291,9° O), Neumayer (70,7° S, 351,7° O), Belgrano 2 (77,9° S, 325,4° O) und Amundsen-Scott (90,0° S, 102° O) gemessen wurde. Anhand dieser Abbildung, die nur Profile im Wirbel berücksichtigt, lässt sich die Breitenabhängigkeit des Ozonabbaus zeitlich verfolgen. Am Anfang des Winters wird an allen Stationen etwa eine Säulendichte von ~250 DU Ozon gemessen und die Form der Profile ist über allen Stationen sehr ähnlich. Am 11. September kann man ein deutlich reduziertes Maximum über den Stationen messen. Das Profil über der Station Amundsen-Scott zeigt das meiste Ozon im ehemaligen Maximum zwischen 15 und 20 km. Da die Sonne am Südpol erst am 22. September aufgeht, haben die Luftmassen über Amundsen-Scott im Mittel weniger Sonne gesehen als Luftmassen weiter nördlich. Um den 10. Oktober ist das Ozon zwischen 14 und 21 km über allen Stationen abgebaut.

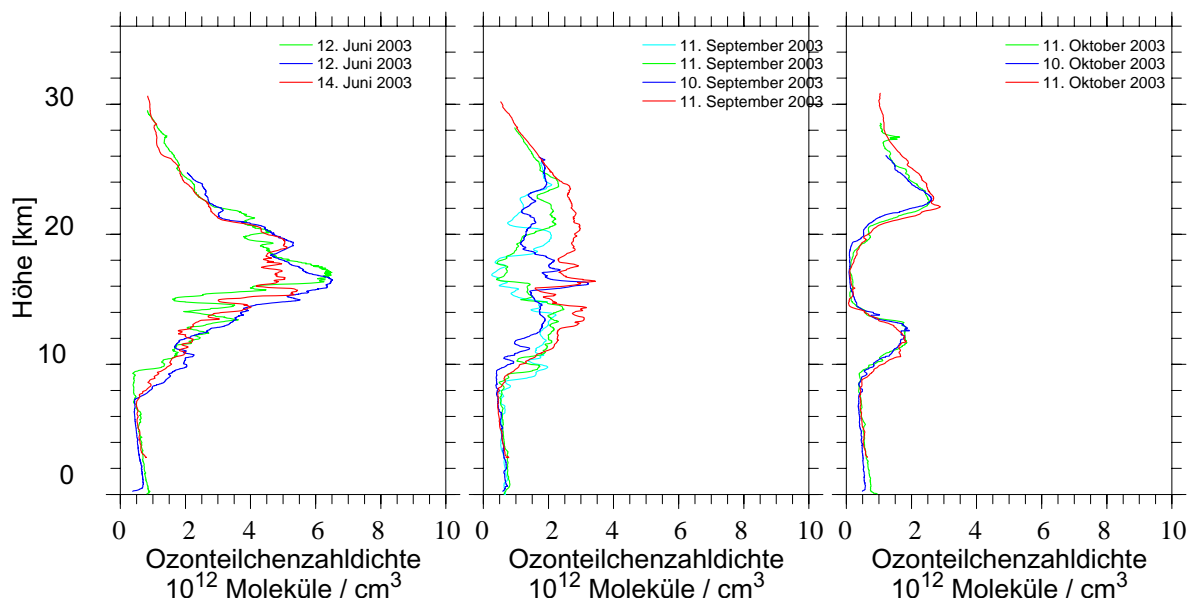


Abbildung 3.9: Ozonprofile über der Antarktis, die an den Stationen Rothera (hellblau), Neumayer (grün), Belgrano2 (dunkelblau) und Amundsen-Scott (rot) am 12/14.06.03, 10/11.09.03 und 10/11.10.03 gewonnen wurden. Alle Stationen liegen innerhalb eines Längenintervalls von 60° und einem Breitenintervall von 65°-90° S.

Die Variation der Ozonschicht über der Neumayer Station als Funktion der Höhe ist analog zu Abbildung 3.7 in Abbildung 3.10 gezeigt. Hier gehen Daten von 1020 Sonden ein, die seit 1992 von Neumayer gestartet wurden. Die Luftschichten oberhalb von 25 km und unterhalb von 10 km verhalten sich sehr ähnlich zur Arktis. Unterschiede zur Arktis finden sich im Höhenbereich des Ozonmaximums. Wenn es im Winter und Frühjahr über Ny-Ålesund zu einer transportbedingten Zunahme des Ozons kommt, findet sich über der Neumayer Station ein Einbruch im Ozonprofil. So zeigt sich ab Ende Juli eine mehr oder weniger gleichzeitige Zerstörung des Ozons in einem Höhenbereich von 14 bis 22 km. Ab Mitte Oktober beginnt nun an der Oberkante des Ozonminimums das Auffüllen durch ozonreiche Luft, die durch die Brewer-Dobson Zirkulation herantransportiert wurde. Der Bereich unterhalb von 20 km regeneriert sich erst nach dem Aufbrechen des Wirbels im November / Dezember. Im Mittel sind dann die Profile im Januar unbeeinflusst durch den Ozonabbau, wie es bereits in Abbildung 3.8 zu erkennen war.

Die antarktische Ozonzerstörung im Winter 2003 wird in Abbildung 3.12 deutlich, die das Gesamtozon am 10. Oktober 2003 mit TOMS Daten darstellt. Der Wirbel ist leicht nach Südamerika verschoben. In seinem Zentrum finden sich minimale Ozonsäulenwerte von 120 DU, während der mittlere Bereich des Wirbels Werte von etwa 140 DU aufweist, die zum Wirbelrand auf Werte von 200 DU ansteigen. Außerhalb des Wirbels sind wurden Ozonsäulendichten von 300-400 DU gemessen.

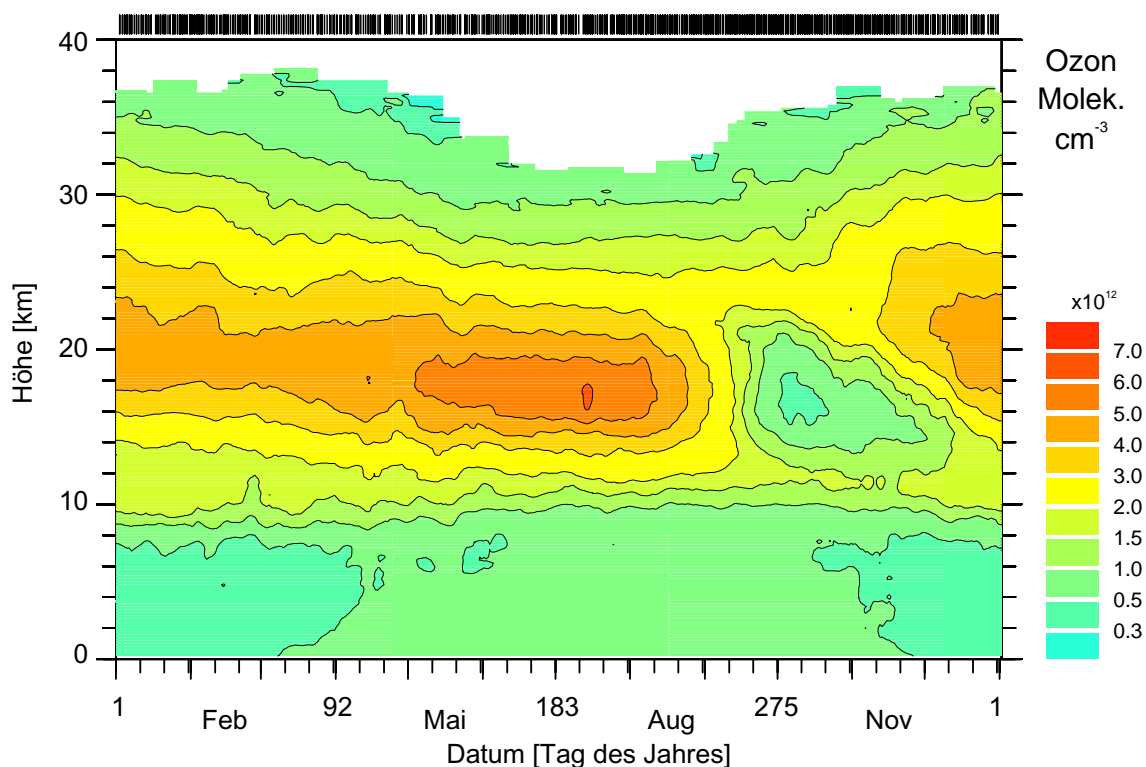


Abbildung 3.10: Wie Abbildung 3.7, für Ozonsonden, die seit 1992 an der Neumayer Station gestartet wurden.

TOMS

25. September 2002

Tag: 268

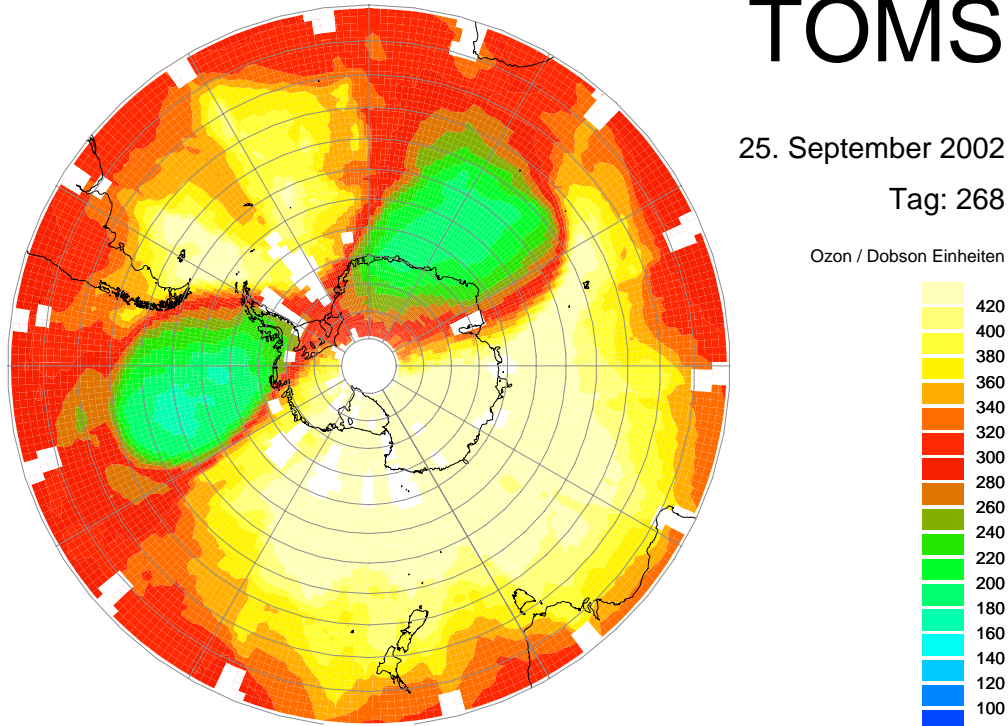


Abbildung 3.11: TOMS Daten des Gesamtozons am 25. September 2002 über der Südhemisphäre. Die Daten wurden vom "Ozone Processing Tema" der NASA zur Verfügung gestellt (<http://toms.gsfc.nasa.gov>) und über das NILU verteilt.

TOMS

10. Oktober 2003

Tag: 283

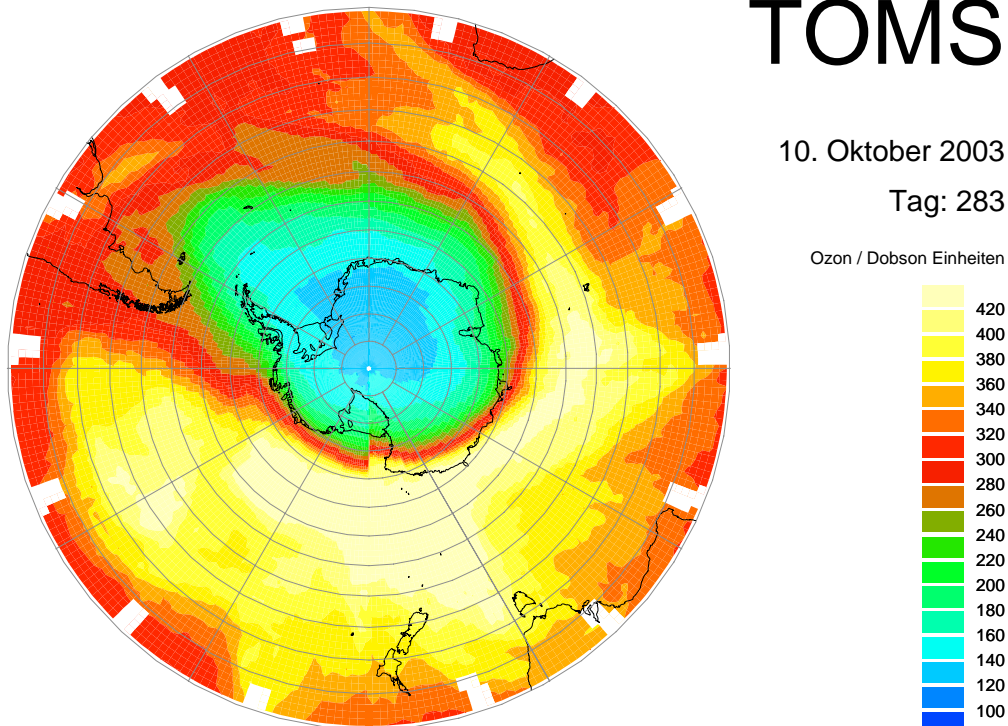


Abbildung 3.12: TOMS Daten des Gesamtozons am 10. Oktober 2003, dem letzten Tag der antarktischen Matchkampagne. Die Daten wurden vom "Ozone Processing Tema" der NASA zur Verfügung gestellt (<http://toms.gsfc.nasa.gov>) und über das NILU verteilt.

3.7 Instrumente zur Messung von Ozon

Da sich diese Arbeit mit der Berechnung von Ozonabbauraten in der unteren und mittleren Stratosphäre befasst, werden an dieser Stelle die Instrumente vorgestellt, deren Daten in die Auswertung eingegangen sind.

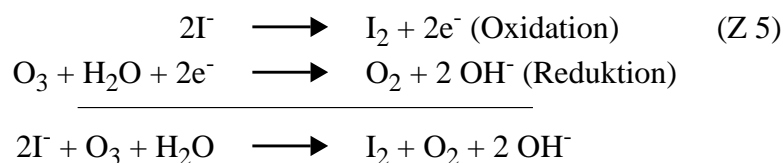
Es gibt zwei verschiedene Ansätze, um die Konzentration eines Spurengases in der Atmosphäre zu ermitteln. Die in-situ Methode misst die Konzentration des Spurengases vor Ort in der Atmosphäre und gibt in der Regel ein hochaufgelöstes Profil des Gases in einer kleinen räumlichen Umgebung wieder. Bei der zweiten Methode, der Fernerkundung, werden Messungen in der Atmosphäre von Instrumenten am Boden oder im Weltall (Satelliten, Space Shuttle) gemacht. Diese haben in der Regel eine geringere vertikale Auflösung, können aber Auskunft über einen größeren räumlichen bzw. zeitlichen Bereich geben als die in-situ Messungen.

3.7.1 Ozonsonden

Ozonsonden stellen seit ihrer Erfindung Mitte der 1960er Jahre das gebräuchlichste Mittel zur in-situ Messung der vertikalen Ozonverteilung dar. Ihr Vorteil ist die geringe Größe und das kleine Gewicht (ca. 1 kg), so dass sie an herkömmliche Wetterballone gehängt werden können. Man erreicht eine hohe Auflösung des vertikalen Ozonprofils und dabei die Abdeckung des Höhenbereichs bis ca. 35 km. Die Ozonsonde ist über ein Interface an eine Radiosonde gekoppelt, die während des Aufstieges die Daten an die Bodenstation funkt. Aufgrund des abnehmenden Luftdrucks beim Aufstieg nimmt das Volumen des Ballons immer weiter zu, bis er platzt. In polaren Gebieten findet der Absturz in der Regel ohne Fallschirm statt, so dass die Geschwindigkeit der Sonde zu groß ist, um das gemessene Profil auf dem Weg nach unten korrekt aufzulösen. Daher werden nur die Daten des Aufstiegs verwendet.

Ozonsonden bestehen aus einem Pumpenmotor, zwei Teflonhalbzellen mit jeweils einer Platinelektrode und einem Interface. Über das Interface werden die Daten zur Radiosonde übermittelt. Die Energieversorgung erfolgt über eine Batterie. Während des Aufstiegs ist die Sonde durch eine Styroporbox vor der Kälte geschützt.

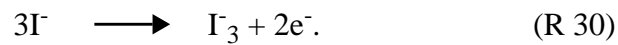
Während der arktischen Kampagne 2002/2003 und der antarktischen Kampagne 2003 wurden im Wesentlichen Ozonsonden des Typs "Electrochemical Concentration Cell" (ECC) der Hersteller ENSCI und Science Pump Cooperation (SPC) verwendet. Im Folgenden beschränkt sich die Beschreibung auf diese zwei Ozonsondentypen, die sich sehr ähnlich sind. Das Grundprinzip der Ozonsensoren ist gleich. Durch eine Pumpe wird die Außenluft in eine elektrochemische Zelle geleitet. Die Elektrolyte der elektrochemischen Zelle bestehen aus Kaliumjodidlösungen (KI) unterschiedlicher Konzentrationen, in die je eine Platinelektrode taucht. Der Stromkreis wird über die beiden Elektroden geschlossen. Darüber hinaus sind die beiden Halbzellen über eine Ionenbrücke miteinander verbunden. Das kontinuierlich durch die Zelle strömende Ozon oxydiert dabei das I^- zu I_2 .



Das Jod reagiert an der Platinkathode zurück zum Jodid.



Dabei fließen pro Ozonmolekül zwei Elektronen von der gesättigten Lösung in der Anodenzelle über den äußeren Stromkreis in die Kathodenzelle unter der Reaktion:



In der Kathodenhalbzelle entstehen Ladungsträger (OH^-) und in der Anodenzelle werden diese vernichtet (R30). Daher wandern die Gegenionen (K^+) von der Kathodenhalbzelle durch die Ionenbrücke in die Anodenhalbzelle und verhindern eine Ladungstrennung, was einen Abbruch der Reaktion zur Folge hätte. Außerdem wird die Anodenhalbzelle durch die Produktion von OH^- -Ionen langsam basisch. Da sich dies auf den gemessenen Strom auswirken würde, verwendet man einen $\text{Na}_2\text{HPO}_4/\text{NaH}_2\text{PO}_4$ Puffer, der den pH-Wert der Lösung konstant hält.

Der elektrische Strom $I(\text{O}_3)$, der bei der Reaktion entsteht, ist linear abhängig vom Partialdruck des Ozons. $I(\text{O}_3)$ berechnet sich nach $I(\text{O}_3) = I_M(\text{O}_3) - I_B(\text{O}_3)$, wobei $I_M(\text{O}_3)$ ist der gemessene Strom und $I_B(\text{O}_3)$ der Hintergrundstrom ist.

$$P(\text{O}_3) = C_{\text{Sonde}} \cdot I(\text{O}_3) \quad (3.4)$$

Die Konstante C_{Sonde} ist wie folgt definiert:

$$C_{\text{Sonde}} = 0,04307 \cdot \eta_{\text{Sonde}} \left(\frac{T_{\text{Pumpe}}}{\Phi_{\text{Pumpe}}} \right) \quad (3.5)$$

Dabei gibt η_{Sonde} die Austauscheffizienz der elektrochemischen Zelle an, die von einer Reihe von Parametern abhängt, wie der Löslichkeit des Ozons im Elektrolyt und der Stöchiometrie der Redoxreaktion Z5. In der Regel beträgt η_{Sonde} ca. 100%. T_{Pumpe} ist die Temperatur des Gases bzw. der Lösung und Φ_{Pumpe} der Volumenfluss durch die Pumpe. Die Güte einer Ozonmessung hängt nun davon ab, wie groß die Fehler der einzelnen Multiplikatoren der Sondengleichung (3.4) sind. Der Gesamtfehler einer Ozonmessung wird mit 5% angegeben. Um während einer Matchkampagne die Qualität aller Ozonmessungen zu gewährleisten, wurden Standardverfahren (engl. Standard Operation Procedures, SOPs) erarbeitet. Jede der Stationen ist angehalten, diese zu befolgen, um eine Vergleichbarkeit der gemessenen Ozonprofile zu erreichen. Neben der unterschiedlichen Handhabung und Vorbereitung der Ozonsonden durch das Personal an den Stationen geht noch ein weiterer Punkt in die Vergleichbarkeit der Ozonsondenmessungen ein. In den Match-Kampagnen der Arktis und Antarktis werden, wie bereits oben erwähnt, ECC Sonden von zwei unterschiedlichen Herstellern verwendet. Vergleiche dieser beiden Ozonsonden haben einen höhenabhängigen Unterschied in den gemessenen Ozonprofilen der Sonden von ca. 0%-10% ergeben. Die Auswirkungen auf die Matchergebnisse sollten klein sein, da sich der systematische Fehler ausmitteln sollte, solange keine der beiden Ozonsonden nur als erste oder nur als zweite Sonde verwendet wird. Viele der beteiligten Stationen besitzen lange Zeitreihen von Ozonmessungen. Da das erste Interesse der Station der Konsistenz der eigenen Zeitreihe gilt, ist es schwierig, mit allen Ozonsondenstationen in allen eine Ozonsondierung betreffenden Punkten übereinzukommen.

Die Vorbereitung einer Ozonsonde ist in drei Schritte unterteilt:

- 1) Drei bis sieben Tag vor dem Flug der Sonde wird diese konditioniert. Dazu wird die Funktion der Pumpe unter kontrollierten ozonreichen Bedingungen getestet. Anschließend werden die Elektrodenlösungen eingefüllt und die Kammern mit ozonarmer und -reicher Luft gespült, um die Funktion der Lösungen zu überprüfen. Darüber hinaus wird getestet, wie schnell die Sonde auf Veränderungen der Ozonkonzentration reagiert.

- 2) Am Tag der Sondierung werden die Elektrodenlösungen ausgetauscht, und der Hintergrundstrom sowie der Volumendurchfluss der Pumpe gemessen.
- 3) Unmittelbar vor der Sondierung wird die Radiosonde in Betrieb genommen und über das Interface an die Ozonsonde angeschlossen. Erfolgt die Kommunikation zwischen Ozonsonde und Interface bzw. Radiosonde und Empfangseinheit reibungslos, wird alles wetterfest verpackt und für wenige Minuten ins Freie gestellt. Da die einige Radiosonden mit einem GPS-Empfänger zur Messung der Windgeschwindigkeit und Richtung ausgestattet sind, wird in dieser Zeit das GPS-Signal von den Navigationssatelliten erfasst. In der Zwischenzeit erfolgt ein Abgleich des Druckes, der Temperatur und der Feuchte der Sonde mit den Bodenmessgeräten und der Wetterballon wird mit Helium befüllt. Der Zulauf des Heliums erfolgt über eine Gaswaage, die dafür sorgt, dass stets die gleiche Menge Helium in den Wetterballon gefüllt wird. Dadurch wird erreicht, dass jede Sonde mit der gleichen Aufstiegs geschwindigkeit misst, die laut WMO Richtlinien bei 5 m/s liegt. Zum Schluss wird die Sonde an den Ballon gehängt und gestartet. Ein Abwickler zwischen Ballon und Sonde sorgt dafür, dass die Sonde während des Aufstieges 60 m unter dem Ballon hängt, um eine Beeinflussung der Sondierung den Ballon zu verhindern.

3.7.2 Satellitenmessungen: ILAS II und POAM III

Als weitere Quellen für Ozonprofile in der Antarktis wurden Daten von zwei Satellitenexperimenten herangezogen.

Es wurden Daten des “*Improved Limb Atmospheric Spectrometer II*” (ILAS II), das sich auf der “*Plattform Advanced Earth Observation Satellite II*” (ADEOS II) befindet, genutzt. ILAS II auf ADEOS II ist der Nachfolger von ILAS auf ADEOS. ILAS wurde im August 1996 vom Tanegashima Space Center in den Orbit geschossen. Nach acht Monaten Routineinsatz und 6700 Messungen versagte ADEOS aufgrund eines Schadens an den Solarzellen. ADEOS II wurde im Dezember 2002 gestartet. Nach einem schweren Sonnensturm im Oktober 2003 brach der Kontakt zum Satelliten ab.

Des Weiteren wurden Daten des “*Polar Ozone and Aerosol Measurement III*” (POAM III) Instruments genutzt, das sich auf der Plattform “*Satellite Pour l’observation de la terre*” (SPOT4) befindet. POAM III wurde im März 1998 von Französisch Guayana in die Umlaufbahn geschossen und ist seither in Betrieb. POAM III ist der Nachfolger von POAM II auf SPOT3, der eine sehr ähnliche Umlaufbahn hatte. Daher sind teilweise Abbildungen, die sich auf POAM II beziehen in die Arbeit aufgenommen worden. Zu POAM II ist der Kontakt im November 1996 abgerissen.

Bei ILAS II handelte es sich um ein Spektrometer, das Wellenlängen im infraroten (IR) und sichtbaren (Vis) Wellenlängenbereich detektiert (Nakajima et al., 2004). POAM III detektiert Strahlung ausschließlich im sichtbaren Bereich (Lucke et al., 1999). Beide Spektrometer wurden zur Messung polarer atmosphärischer Bestandteile konzipiert. Um die Spurengase über der Arktis und Antarktis optimal zu vermessen, wurde für beide Satelliten ein sonnensynchroner Orbit mit ca. 800 km Höhe und einer Inklination von ca. 98,7° gewählt. Der sonnensynchrone Orbit bewirkt, dass sich die Breite der Messung nur gering von Tag zu Tag ändert, während sich die Länge um 25° ändert. Eine Zusammenfassung der wichtigsten Satellitenparameter ist in Tabelle 3.1 dargestellt.

Tabelle 3.1: Daten der Satelliteninstrumente POAM III und ILAS II

Parameter	ILAS II	POAM III
Plattform	ADEOS II	SPOT 4
Höhe	802,9 km	833 km
Inklination	98,62°	98,7°
Orbit	sonnensynchron	sonnensynchron
Umlaufzeit	101 min	101 min
Breitenabdeckung Nord	57°-72°	54°-71°
Breitenabdeckung Süd	65°-90°	63°-88°
Messmethode	Sonnenokkultation	Sonnenokkultation
Spektrometer	IR/Vis-Spektrometer	Vis-Spektrometer
Art der Messung	Absorption	Absorption
Gewicht	132,6 kg	ca. 25 kg

Die Breitenabdeckung beider Satelliten und die lokale Uhrzeit der Messpunkte können aus Abbildung 3.14 (a) und (b) entnommen werden (Glaccum et al., 1996). Die Breitenabdeckung für den Zeitraum der verwendeten Daten von POAM III und ILAS II ist noch einmal in Abbildung 8.1 zu sehen.

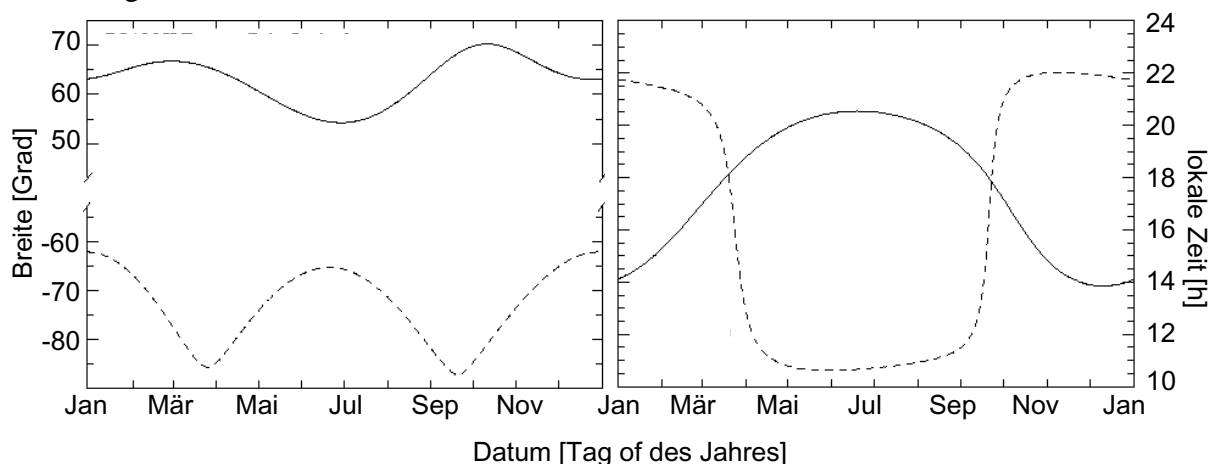


Abbildung 3.14: (a) Breitenabdeckung von POAM II, (b) lokale Uhrzeit der Messung von POAM II. Die durchgezogene Linie zeigt den Verlauf in der Nordhemisphäre, die gestrichelte Linie den Verlauf in der Südhemisphäre. Abbildung von <http://wvms.nrl.navy.mil/POAM/poam3/poam3.html>

Beide Satelliten nutzen die Sonnenokkultationstechnik (engl. Solar Occultation Technique), um das Vorkommen der Spurengase zu quantifizieren. Die Spurengase in der Atmosphäre filtern gemäß ihrer Absorptionscharakteristik Licht wellenlängenabhängig aus dem Sonnenspektrum. Aus der Stärke der Absorptionslinien wird auf den Gehalt der Spurengase zurückgeschlossen.

Es erfolgen zwei Messungen pro Orbit, einmal wenn der Satellit aus dem Erdschatten herausfliegt und das zweite Mal, wenn er in den Erdschatten hineinfliegt. Bei einer Umlaufzeit von ca. 101 Minuten ergeben sich etwas mehr als 14 Umläufe pro Tag und somit 14 Sonnenauf- und 14 Sonnenuntergänge. Das Messkonzept soll hier anhand eines Sonnenaufgangs in Abbildung 3.15 dargestellt werden. Der Satellit fliegt aus dem Erdschatten in das Sonnenlicht hinein. In der Atmosphäre zwischen Satellit und Sonne werden nun in rascher Abfolge Absorptionsspektren aufgenommen, bis die Atmosphäre überflogen ist. Dann erfolgt eine Referenzmessung, die zur Kalibrierung der Spektren genutzt wird. In umgedrehter Reihenfolge finden die Messungen bei Sonnenuntergang statt. Der Tangentialpunkt einer Messung ist der Punkt, der der Erde am nächsten ist.

Da die Spektrometer während des Überfluges Messungen auf verschiedenen Höhen der Atmosphäre machen und die benötigte Zeit für ein Spektrum kurz gegenüber der Reisezeit des Satelliten ist, lassen sich Vertikalprofile der einzelnen Spurenstoffe detektieren. Zur Erzeugung von Vertikalprofilen wird das Zwiebel-Schalen-Verfahren (engl. Onion Peeling) genutzt. Dabei wird die Annahme gemacht, dass das jeweilige Spurengas homogen in jeder Höhenschicht verteilt ist. Ausgehend von der Messung in der höchsten Luftschicht über der Erde zieht man nun das Vorkommen der Spezies in der Luftschicht von der nächst folgenden Luftschicht ab. Dabei hilft die Tatsache, dass entlang eines Pfades Sonne-Satellit die Absorption geometriebedingt am sensitivsten auf die Spurenstoffkonzentration am Tangentialpunkt reagiert. So ist es möglich, Schicht für Schicht die Konzentration des Stoffes in der jeweiligen Luftschicht zu bestimmen. Die erreichte vertikale Auflösung der Profile für die in dieser Arbeit verwendeten Spurengase von ILAS II und POAM III wird für Ozon mit ca. 0,8 - 1 km und für N₂O und CH₄ von ILAS II mit ebenfalls ~1 km angegeben, siehe Tabelle 3.2 und Tabelle 3.3 (Lumpe et al., 2002; Nakajima et al., 2004).

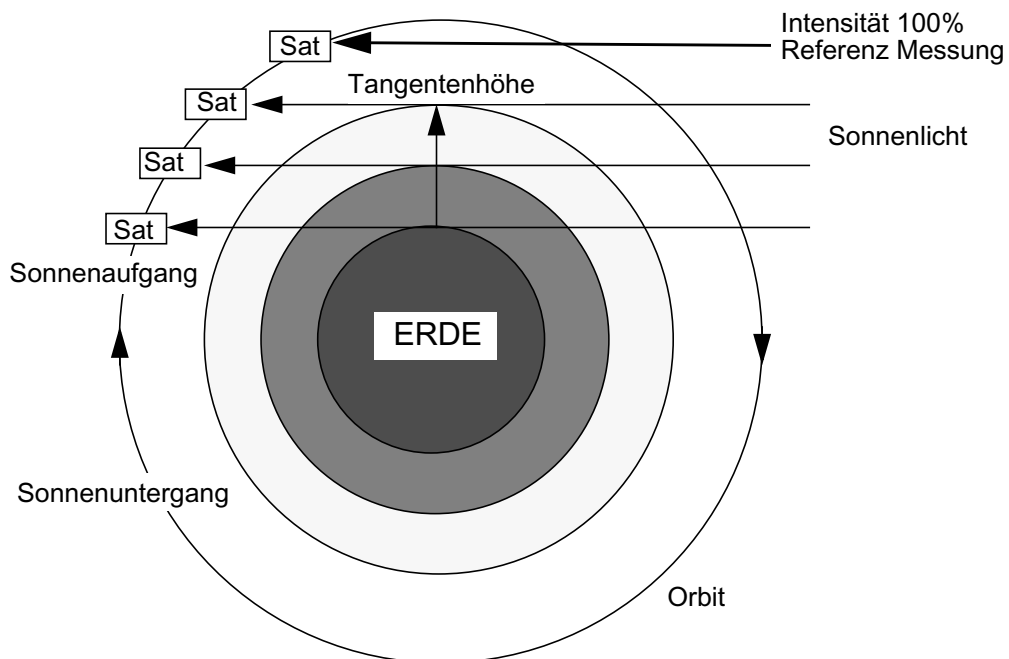


Abbildung 3.15: Beschreibung der Sonnenokkultationstechnik. Der Satellit ist als kleines Kästchen dargestellt. Aufgrund der Entfernung zur Sonne sind die Sonnenstrahlen parallel dargestellt. Die Abbildung ist nicht maßstabsgetreu. Abbildung nach ILAS-II User's Handbook Version 1.1 (www-ilas2.nies.go.jp).

In Abbildung 3.16 sind zwei Ozonprofile von ILAS II gezeigt, die zu unterschiedlichen Zeiten und geographischen Breiten im antarktischen Polarwirbel aufgenommen wurden. Profil (a) ist Anfang des Winters aufgenommen worden und Profil (b) im Frühjahr. Für die Match-Analyse wurde nur der Bereich bis ca. 24 km genutzt. Die einzelnen Messungen sind als Punkte dargestellt. Im Gegensatz zu Ozonsonden sind mit einem Satelliteninstrument Profile bis 70 km Höhe und darüber möglich. In Profil (b) ist der chemische Ozonabbau zwischen 14 und 20 km zu erkennen.

3.7.2.1 ILAS II-Spektrometer

ILAS II ist mit vier Gitter-Spektrometern ausgestattet, von denen drei im infraroten und eins im sichtbaren Bereich messen. Kanal 1 misst thermales Infrarot von 6,2-11,8 μm , Kanal 2 mittleres Infrarot von 3,0-5,7 μm und der dritte IR Kanal misst die Absorptionslinien von Chlornitrat im Bereich um 12,8 μm . Das einfallende Sonnenlicht wird durch einen in 3 Dimensionen beweglichen Spiegel aufgenommen, durch einen dichroitischen Spiegel geteilt und schließlich durch eine Optik auf die Eingangsblende des IR / Vis-Spektrometers fokussiert. Am Gitter wird das Licht gebeugt, nach Wellenlängen aufgespalten und auf dem pyroelektrischen Detektor abgebildet. Dieser besteht im Falle von Kanal 1 aus 44 Pixeln und im Fall von Kanal 2 aus 22 Pixeln. Mit Kanal 1 und 2 werden O_3 , HNO_3 , NO_2 , N_2O , CH_4 , H_2O , CFC-11, CFC-12 und Aerosol gemessen. Außerdem wird mit Kanal 2 CO_2 vermessen, um daraus den Druck zu errechnen.

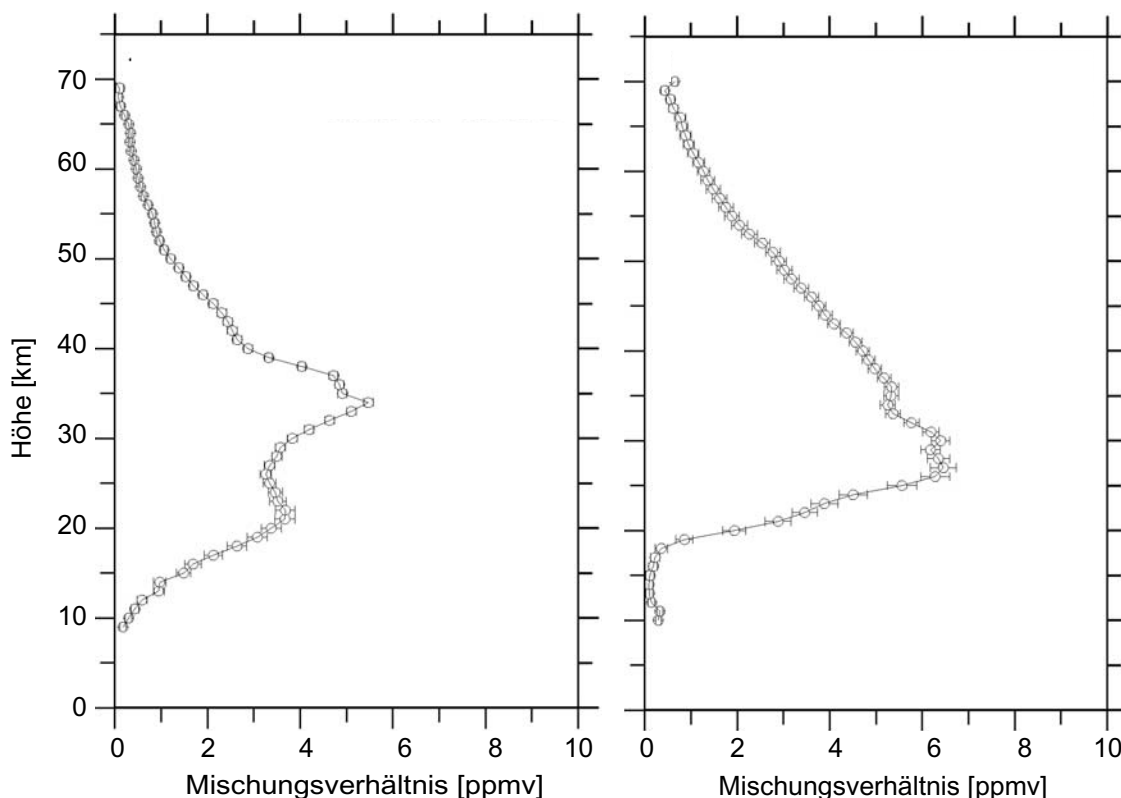


Abbildung 3.16: Ozonprofile, die von ILAS II am 1. Juli 2003 bei einer Breite von $65,6^\circ \text{S}$ (a) und am 15. Oktober 2003 bei einer Breite von $80,3^\circ \text{S}$ (b) aufgenommen wurden. Gezeigt ist das Mischungsverhältnis gegen die Höhe. Die einzelnen Messungen sind mit einem Punkt dargestellt.

Das Beugungsgitter des Vis-Spektrometers ist ein konkaves holographisches Gitter, das das Spektrum auf den Detektor leitet, der aus 1024 Pixeln besteht. Über das Vis-Spektrometer werden Aerosole, Temperatur und Dichte der Atmosphäre gemessen (siehe Tabelle 3.2).

Tabelle 3.2: ILAS II Spektrometer Beschreibung

Kanal	λ	detektierte Größe
1	6,211-11,765 μm	O ₃ , HNO ₃ , H ₂ O, N ₂ O, NO ₂ , CH ₄ , CFC-11, CFC-12, Aerosol
2	3,0-5,7 μm	O ₃ , N ₂ O, H ₂ O, CH ₄ , CO ₂ , Aerosol
3	12,78-12,85 μm	ClONO ₂
4	753-784 nm	Temperatur, Dichte der Atmosphäre, Aerosol

3.7.2.2 POAM III-Spektrometer

Bei dem POAM III-Spektrometer handelt es sich um ein Vis-Spektrometer mit neun separaten Kanälen. Schmalbandige Interferenzfilter liegen hinter der Blende und lassen nur die erforderlichen Wellenlängen auf den Photodioden-Detektor. NO₂, O₂ und H₂O besitzen im Vis-Bereich schmale Absorptionsbanden (Kanal 2, 5, 8). Zur genaueren Messung wird eine Wellenlänge mitten im Absorptionsmaximum detektiert (on peak) und zusätzlich eine durch das Spurengas unbeeinflusste Wellenlänge nahe dem Absorptionsmaximum (off peak). Daraus ergibt sich die Teilmenge Licht, die durch die Absorption herausgefiltert wurde, genauer. Filter 1 und 9 lassen einen größeren Wellenlängenbereich des Lichtes durch, um die Abschwächung der Rayleigh-Streuung in der Atmosphäre und die Streuung des Lichtes an Aerosolteilchen zu messen. Das Aerosol wird zusätzlich noch mit den Off-Kanälen 3, 6 und 7 gemessen.

Tabelle 3.3: POAM III Spektrometer Beschreibung

Kanal	λ [nm]	$\Delta\lambda$ [nm]	detektierte Größe
1	353,4	9,71	Rayleigh Streuung
2	439,6	2,1	NO ₂ (on peak)
3	442,2	2,1	NO ₂ (off peak), Aerosol
4	603	17,7	O ₃
5	761,3	2,3	O ₂ (on peak)
6	779	10,2	O ₂ (off peak), Aerosol
7	922,4	2,6	H ₂ O (off peak), Aerosol
8	935,9	2,9	H ₂ O (on peak)
9	1018	11,6	Aerosol

Ozon wird nahe dem Maximum der Chappuis-Bande bei $\lambda = 601$ nm gemessen. Aus den Messungen des molekularen Sauerstoffs können die Temperatur und der Druck der Atmosphäre abgeleitet werden. Man kann diese Daten aber auch benutzen, um die Höhe der Messungen abzugleichen. Dazu berechnet man aus meteorologischen Daten theoretische Absorptionsspektren des Sauerstoffs. Durch Vergleich mit den gemessenen Sauerstoffspektren ist die Bestimmung der Tangentenhöhe der Messung möglich (Lumpe et al., 2002).

Kapitel 4

Matchtechnik

4.1 Verschiedene Methoden zur Bestimmung von polarem Ozonabbau

Zur Messung des Ozonverlusts in der unteren und mittleren Stratosphäre über der Arktis wurden verschiedenen Methoden entwickelt. Zu Beginn dieses Kapitels werden einige dieser Techniken kurz vorgestellt, bevor auf die in dieser Arbeit verwendete Matchtechnik und deren Neuerungen eingegangen wird.

4.1.1 Die Tracer-Korrelationstechnik

In der Tracer-Korrelationstechnik macht man sich das Verhältnis zwischen Ozon und den praktisch chemisch inerten Spurengasen CH_4 , HF oder N_2O im stratosphärischen Polarwirbel zu nutze. Die Lebensdauer der passiven Spurengase ist lang und daher ihr Mischungsverhältnis annähernd vom Winter bis zum Frühjahr konstant. Aufgrund der Isolierung der Luftmassen im Polarwirbel wird das passive Spurengas-Ozon Verhältnis nicht durch dynamische Einflüsse gestört, da diese gleichermaßen auf alle Spurengase wirken. Eine Änderung im Verhältnis Spurenstoff-Ozon kann also chemischen Prozessen zugeordnet werden. Am Anfang des Winters, wenn sich der Polarwirbel gebildet und es noch keinen signifikanten Ozonabbau gegeben hat, wird das Verhältnis von passivem Spurengas zu Ozon zum ersten Mal bestimmt. Die Abweichung von diesem Verhältnis innerhalb des Polarwirbels im Laufe des Frühjahrs wird dem chemischen Ozonabbau zugeschrieben. Wichtig ist die dauernde Kontrolle der Dichtigkeit der Wirbelgrenze, da sonst die Korrelation durch Einmischung von Luft, die von außerhalb des Polarwirbels stammt, verändert wird.

Proffitt et al. (1990, 1993) nutzten erstmals N_2O und Ozonmessungen aus Flugzeugkampagnen im Winter 1989/1990 und 1991/1992 über der Arktis, um Ozonabbau mit der Tracer-Korrelationstechnik zu berechnen. Müller et al. (1997) bzw. Tilmes et al. (2004) haben diese Technik weitergeführt und die CH_4 , HF und O_3 Messungen des “Halogen Occultation Experiment” (HALOE) auf dem “Upper Atmosphere Research Satellite” (UARS) ausgewertet. Dabei wird nicht nur das Verhältnis der passiven Spurenstoffe zum Ozon genutzt, sondern auch eine Kontrolle der passiven Spurenstoffmessungen erreicht, indem die Änderungen der Korrelation der inerten Tracer CH_4 und HF untereinander berechnet werden.

4.1.2 Die Wirbelmitteltechnik

Manney et al. (1994b, 1997) wendeten die Wirbelmitteltechnik für verschiedene arktische Winter auf Daten des “Microwave Limb Spectrometers” (MLS) auf UARS an. Dabei werden alle im Wirbel stattgefundenen Messungen in Zeitzeonen gemittelt und daraus ein mittleres Ozonmischungsverhältnis für einzelne Tage des Winters berechnet. Dynamische Effekte und diabati-

ches Absinken der Luftmassen im Polarwirbel wurden durch Trajektorienrechnungen kontrolliert. Als letzter Schritt wird nun das gemittelte Profil des letzten Zeitschrittes von dem des ersten Zeitschrittes abgezogen. Diese Differenz wird als chemischer Ozonabbau interpretiert.

Rex et al. (2002), Hoppel et al. (2002) und Singleton et al. (2004) nutzten dieselbe Technik in der Arktis für die Winter 1999/00 bzw. 2002/2003, um Ozonabbau zu berechnen. Die Bestimmung des Ozonabbaus beginnt hier allerdings erst zu einem Zeitpunkt, wenn der Wirbel bereits voll ausgeprägt ist, da so keine Korrekturen für eventuelle Undichtigkeiten des Wirbels notwendig werden. Die Änderung des Mischungsverhältnisses durch Einmischung von Luftmassen über die Wirbelgrenze kann dann näherungsweise vernachlässigt werden und nur das Absinken der Luftmassen im Wirbel muss berücksichtigt werden.

4.1.3 Die Passive Subtraktionstechnik

Bei der passiven Subtraktionstechnik wird Ozon als inerter Tracer in einem 3D-Chemischen Transport Model (CTM) innerhalb des Polarwirbels berechnet. Das bedeutet, dass alle Reaktionen, die zur chemischen Zerstörung von Ozon führen, während des Modellaufes ausgeschaltet sind. Änderungen des Ozonmischungsverhältnisses ergeben sich nur aufgrund von dynamischen Einflüssen. Das errechnete passive Ozon wird dann von Ozonmessungen abgezogen (z.B. Manney et al., 1995; 2003). Die auftretende Differenz wird als chemischer Ozonabbau gedeutet. Singleton et al. (2004) nutzten diese Technik, um mit dem “Semi-Lagrangian Model of Chemistry and Transport” (SLIMCAT), einem nicht interaktivem 3D-CTM, Ozon als passiven Tracer für den Winter 2002/2003 zu berechnen. Ozonprofile des POAM III Instruments wurden dabei als Messungen subtrahiert. Zwei Probleme birgt diese Methode: Zu Beginn des Winters muss das Ozonfeld durch experimentelle Daten initialisiert werden. Dafür bieten sich Satellitendaten an, da diese einen großen Bereich der Stratosphäre abdecken. Allerdings ist ein Satellit, der Ozonfelder für die Initialisierung eines Modells zur Verfügung stellen kann, aufgrund seiner Bahnparameter nicht in der Lage, ausreichende Messungen im Polarwirbel zu machen. Daher werden in der Regel Datensätze von unterschiedlichen Quellen zur Initialisierung und Bestimmung des Ozonabbaus genutzt, was einen systematischen Fehler zur Folge haben kann. Des Weiteren wurde gezeigt (Manney et al. 1995), dass der passive Transport von Ozon in 3D-CTM's nur auf Zeitskalen von einem Monat korrekte Werte liefert. Diese Aspekte müssen bei der Interpretation des Ozonverlustes berücksichtigt werden.

4.1.4 Vergleich der Techniken

Die Schwierigkeiten der oben genannten Methoden, Ozonabbau zu quantifizieren liegen darin, dass entweder ein Modell eingeschaltet wird oder die Dichtigkeit des Polarwirbels gewährleistet sein muss. Die Matchtechnik ist in der Lage neben dem integrierten Ozonabbau Ozonabbauraten direkt zu bestimmen und kann dabei weitestgehend auf Modelle bzw. die Dichtigkeit des Polarwirbels verzichten.

4.2 Die Matchtechnik

Die Methode wurde von von der Gathen und Rex im Jahre 1992 (von der Gathen et al., 1995; Rex, 1997a) entwickelt. Während des Winters 1991/92 fand in der Arktis eine europäische Kampagne zur Bestimmung von Prozessen, die zum arktischen Ozonabbau führen, statt. Die Kampagne trug den Namen “European Arctic Stratospheric Ozone Experiment” (EASOE). Im Rahmen der Experimente wurden ca. 1200 Ozonsonden an verschiedenen Stationen in hohen und mittleren Breiten gestartet. Im Anschluss an die Feldmessungen wurden 10-tägige Rück-

wärtstrajektorien auf Basis meteorologischer Daten des EZMW von den Messpunkten der Ozonsonden auf isentropen Niveaus gerechnet. Grundprinzip der Matchmethode ist die Beprobung desselben Luftpaketes im Polarwirbel zu verschiedenen Zeitpunkten. Werden zwei Messungen gefunden, die im Rahmen bestimmter Qualitätsparameter durch eine Trajektorie verbunden werden können, wird dadurch der dynamische Einfluss auf das gemessene Ozonmischungsverhältnis zu einem großen Teil eliminiert. Ein solches doppelt beprobtes Luftpaket wird Match genannt. Die Veränderungen des Mischungsverhältnisses innerhalb des Luftpaketes kann dann auf chemischen Ozonabbau zurückgeführt werden.

Im arktischen Winter 1994/1995 fand das “Second European Stratospheric Arctic and Mid-latitude Experiment” (*SESAME*) statt. Um eine Erhöhung von doppelt beprobten Luftpaketten zu erhalten, wurde in diesem Winter die erste aktiv koordinierte Matchkampagne durchgeführt. Dazu wurden die Ozonsondenstarts an den teilnehmenden Stationen durch das Alfred-Wegener-Institut Potsdam koordiniert. Als Grundlage dienten Vorwärtstrajektorien, die den Vorhersageanteil der meteorologischen Daten des EZMW enthielten, um die an der Kampagne beteiligten Stationen frühzeitig über die Ankunft eines bereits beprobtes Luftpaketes über ihrer Station zu benachrichtigen. Diese Technik hat sich bewährt und wurde seitdem, mit Ausnahme der Winter 2001/2002 und 2003/2004, in jedem arktischen Winter angewendet (Rex et al., 1997a; 1999; 2002; Schulz et al., 2000a; 2001).

4.2.1 Die Matchkriterien

Ein Beispiel für einen Match ist in Abbildung 4.1 und Abbildung 4.2 gegeben. Da ein einmal beprobtes Luftpaket nicht genau beim zweiten Beprobten getroffen werden kann, werden im folgenden Abschnitt die Kriterien vorgestellt, die eingehalten werden müssen, damit eine Doppelbeprobung für die Auswertung brauchbar ist, man also von einem Match sprechen kann. Eine genaue Erläuterung der Match-Kriterien ist in Rex (1997a; 1999) zu finden.

Abbildung 4.1 zeigt die zentrale Trajektorie in Teilabbildung (a), sowie den Startpunkt an der australischen Station Davis (b) und die Ankunft über der japanischen Station Syowa (c). Die Trajektorie startet am 13. August 2003 auf dem $\Theta = 470$ K Niveau. Während der Reisezeit findet diabatisches Absinken statt, so dass sich das Luftpaket am 22. August 2003 auf der Höhe von $\Theta = 466,9$ K befindet.

Die Trajektorie in Teilabbildung (a) ist in rote und blaue Punkte unterteilt, die kennzeichnen, ob das Luftpaket dem Sonnenlicht ausgesetzt und damit gleichzeitig Ozonabbau möglich war, oder ob der Weg des Luftpaketes in Dunkelheit verlief. Die Gesamtflugdauer betrug 211 Stunden und der Anteil im Sonnenlicht 88,7 Stunden.

In Teilabbildung 4.1 (b) liegen die Sondenmessung und der Startpunkt der zentralen Trajektorie übereinander. Der geographische Unterschied zur Station ergibt sich aus der Abdrift, die die Sonde während des Aufstiegs erfährt. Die grünen Punkte kennzeichnen die Schwarmtrajektorien, um die zentrale Trajektorie herum. Die Startpunkte der Schwarmtrajektorien (grüne Sterne) liegen vom Startpunkt der zentralen Trajektorie, am Ort der ersten Sondierung, jeweils 100 km in Richtung Norden, Osten, Süden und Westen. Zwei weitere Schwarmtrajektorien werden 5 K über und unter dem eigentlichen Niveau der Sondenmessung berechnet, so dass sich ein dreidimensionales Cluster von sieben Trajektorien ergibt. In Teilabbildung 4.1 (c) sind die Ankunft der Trajektorie über der Station Syowa und der Ort der zweiten Sondenmessung gezeigt. Der Matchradius ist mit einem Doppelpfeil gekennzeichnet und ergibt sich als Differenz zwischen dem Ort der Sondenmessung und dem Ort der Trajektorie zum gleichen Zeitpunkt.

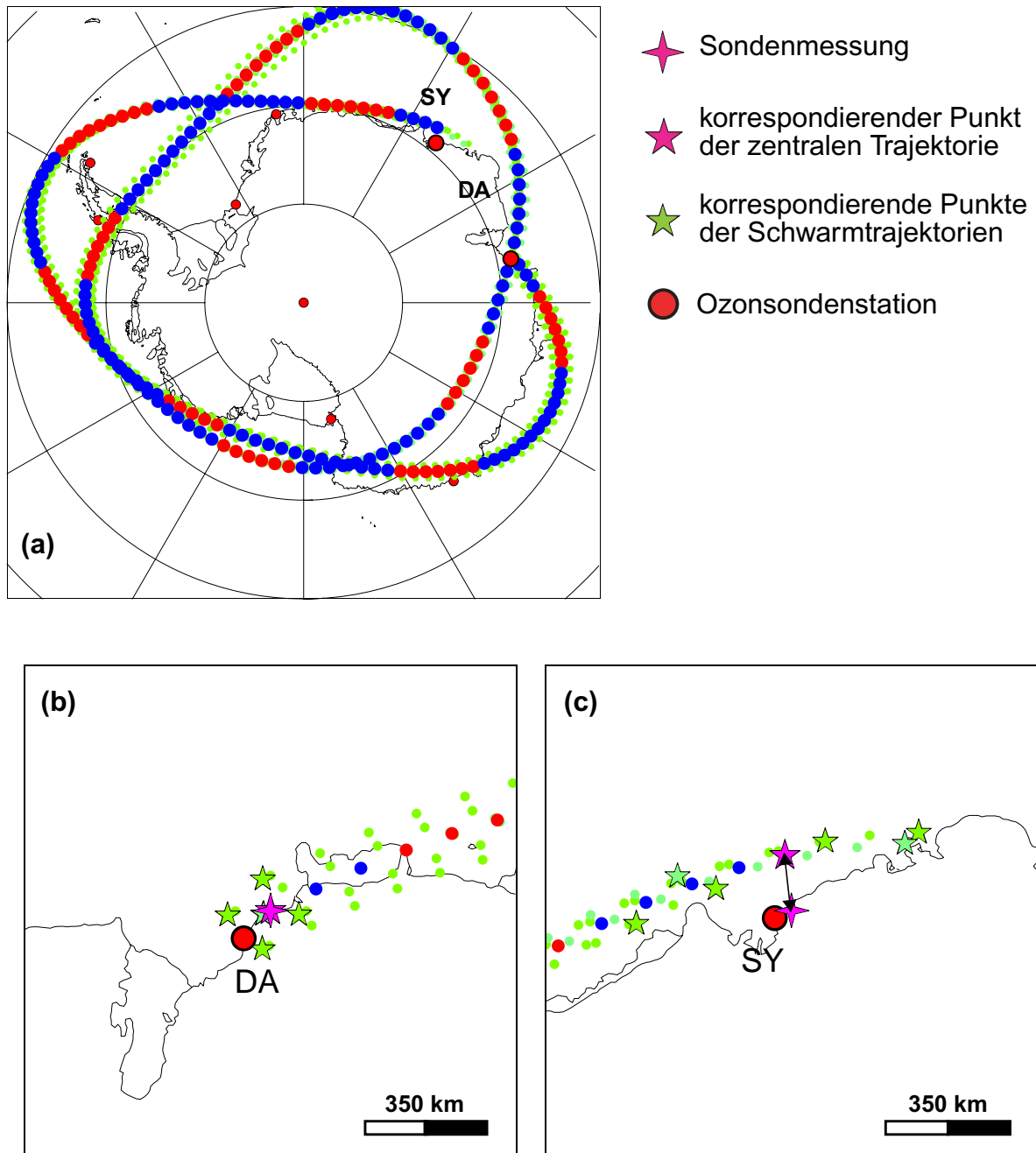


Abbildung 4.1: Beispiel für einen Match in der Antarktis, der von der australischen Station Davis ausgeht und zur japanischen Station Syowa führt. In Fenster (a) ist der berechnete Weg des Luftpaketes dargestellt, dessen Ozongehalt am 13. August 2003 auf dem $\Theta = 470$ K Niveau zum ersten Mal gemessen und am 22. August 2003 auf dem $\Theta = 466,9$ K Level ein weiteres Mal beprobt wurde. Die sonnenbeschienenen Teile der Trajektorie sind rot gekennzeichnet, der Verlauf in Dunkelheit ist in blau gekennzeichnet. Die Positionen der Schwarmtrajektorien sind in grünen Punkten wiedergegeben. In Teilabbildung (b) ist der Startpunkt der Trajektorie an der Station Davis zu sehen. Die Sondenmessung und der Startpunkt der Trajektorien, die als magenterfarbene Sterne gekennzeichnet sind, fallen in einem Punkt zusammen. Die Startpunkte der Schwarmtrajektorien sind als grüne Sterne gekennzeichnet. In Teilabbildung (c) ist die Ankunft des Luftpaketes über der Syowa Station gezeigt. Der Matchradius (schwarzer Pfeil) ergibt sich als Differenz zwischen den magentafarbenen Sternen, die die Sondenmessung und den korrespondierenden Punkt der Trajektorie kennzeichnen. Der Nullmeridian in Teilabbildung (a), (b) und (c) zeigt nach oben.

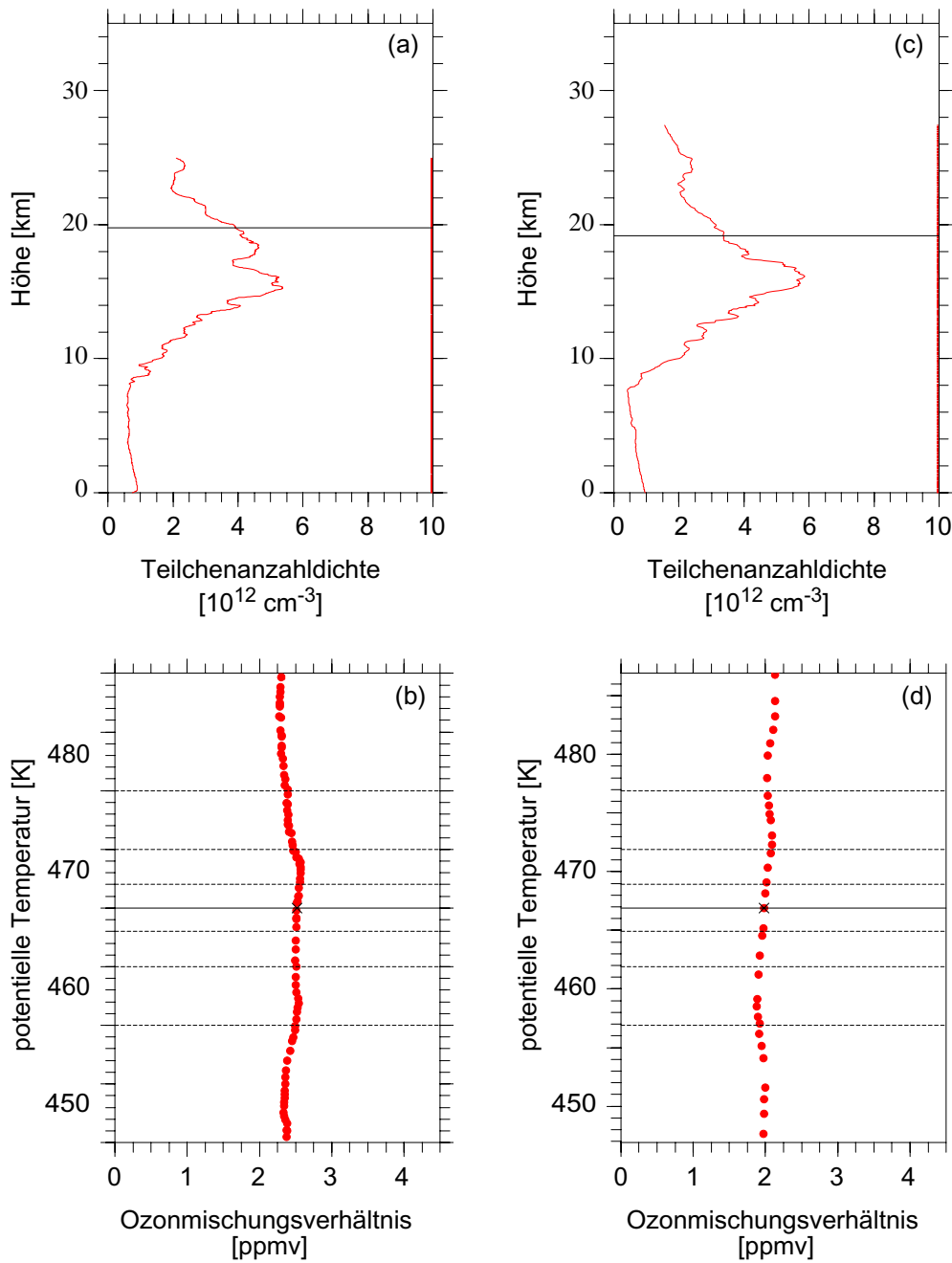


Abbildung 4.2: Zugehörige Ozonprofile zum Match aus Abbildung 4.1. Teilabbildung (a) zeigt das Höhenprofil des Ozons als Teilchenanzahldichte, über Davis. Der waagerechte Strich bei ca. 20 km entspricht $\Theta = 470 \text{ K}$ und kennzeichnet die Höhe von der die Trajektorie losgerechnet wurde. Teilabbildung (b) zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des Mischungsverhältnisses. Der Wert, der genutzt wurde, ist als Kreuz gekennzeichnet. Weitere waagerechte Striche sind in Abständen von $\pm 2, 5$ und 10 K gezeichnet, die als Orte für Qualitätskriterien dienen, siehe Abschnitt 4.2.1. Die Teilabbildungen (c) und (d) zeigen das gleiche für die zweite Sonde des Matches, die an Syowa gestartet wurde. Durch das diabatische Absinken der Luftmasse erreicht die zentrale Trajektorie das $\Theta = 466,9 \text{ K}$ Niveau.

Der Trajektorien-Cluster hat seine ursprüngliche Form verloren, ist aber in bestimmten Grenzen, die nachstehend erläutert werden, zusammengeblieben. Teilabbildung 4.2 (a) zeigt das vertikale Profil des Aufstieges an der Station Davis am 13. August 2003. In Teilabbildung 4.2 (b) ist ein Ausschnitt aus dem Profil um den genutzten Ozonwert gezeigt. Die Starthöhe ist das $\Theta = 470$ K Niveau. Dieser Wert ist mit einem Kreuz gekennzeichnet. Darüber hinaus finden sich waagerechte Striche 2 K, 5 K und 10 K ober- und unterhalb des Niveaus wieder. Diese geben die Niveaus der Ozonvariationskriterien an, die im folgenden Absatz näher erläutert werden.

4.2.2 Qualitätsparameter

Da in der Realität das Konzept der zweimaligen Beprobung desselben Luftpaketes nur unzureichend erfüllt wird, müssen Qualitätsparameter angewendet werden, um verlässliche Ergebnisse zu bekommen. Da es sich bei der Matchmethode um einen statistischen Ansatz handelt, muss zwischen strengen Kriterien, die den dynamischen Einfluss auf das Ozonmischungsverhältnis minimieren, und der Anzahl von Matches, die erreicht werden muss, um eine statistisch Aussage machen zu können, abgewägt werden. Für eine ausführliche Diskussion der Matchkriterien siehe Rex (1992; 1997a).

Die Parameter aus Rex (1997a) wurden größtenteils übernommen und den Bedingungen der Kampagnen angepasst. Die Qualitätsparameter werden im Folgenden beschrieben:

Wirbelrand

Um sicher zu gehen, dass nur Ozonmessungen mit in die Auswertung einfließen, die im Wirbel stattgefunden haben, muss die Wirbelgrenze festgelegt werden. In dieser Arbeit wird die Wirbelgrenze anhand des stärksten PV-Gradienten definiert. In Abbildung 4.3 ist ein Graph zur Ermittlung der Wirbelgrenze dargestellt. Die schwarze Linie stellt die PV über der äquivalenten Breite auf $\Theta = 475$ K dar. Die äquivalente Breite ergibt sich als Fläche, die von einer bestimmten PV-Isolinie umschlossen wird. Stellt man dieselbe Fläche kreisförmig um den Pol zentriert auf der Erdoberfläche dar, dann nennt man die geographische Breite des Randes dieser Fläche äquivalente Breite. Die Ableitung der normierten PV nach der äquivalenten Breite ist in rot aufgetragen. Die Skalierung der y-Achse ist für die schwarze Kurve angegeben. Der stärkste Gradient der PV entspricht also dem steilsten Punkt in der schwarzen Kurve bzw. dem Maximum der roten Kurve. Der Wirbelrand kann so bestimmt werden und liegt für diesen Zeitraum (16. Januar bis 23. Januar 2003) bei ~ 35 s⁻¹. Dies stimmt gut mit den Ergebnissen früherer Jahre überein, in denen die Außengrenze des Wirbels auf 36 s⁻¹ normierte PV festgelegt wurde.

Wie in Abbildung 4.3 deutlich wird, gibt es einen breiten Bereich, in dem der Wirbel einen starken PV-Gradienten aufweist. Daher wurde für die Matchmethode ein Wirbelrandbereich definiert, der bis 42 s⁻¹ reicht. Bereiche höherer PV werden als Wirbelkern bezeichnet.

Erhalt der PV entlang der Trajektorie

Jeder Zeitschritt der Trajektorie enthält die PV. Liegt der maximale Unterschied der PV, nach Glättung durch die Bildung eines laufenden 5-Stunden-Mittels, entlang der Trajektorie über 25%, wird die Trajektorie aussortiert. Für die Antarktis wurde der Schwellenwert auf 15% abgesenkt. Darüber hinaus wird der Mittelwert der PV entlang der Trajektorie berechnet. Wenn dieser kleiner ist als der Wert für den Wirbelrand, wird die Trajektorie ebenfalls aussortiert.

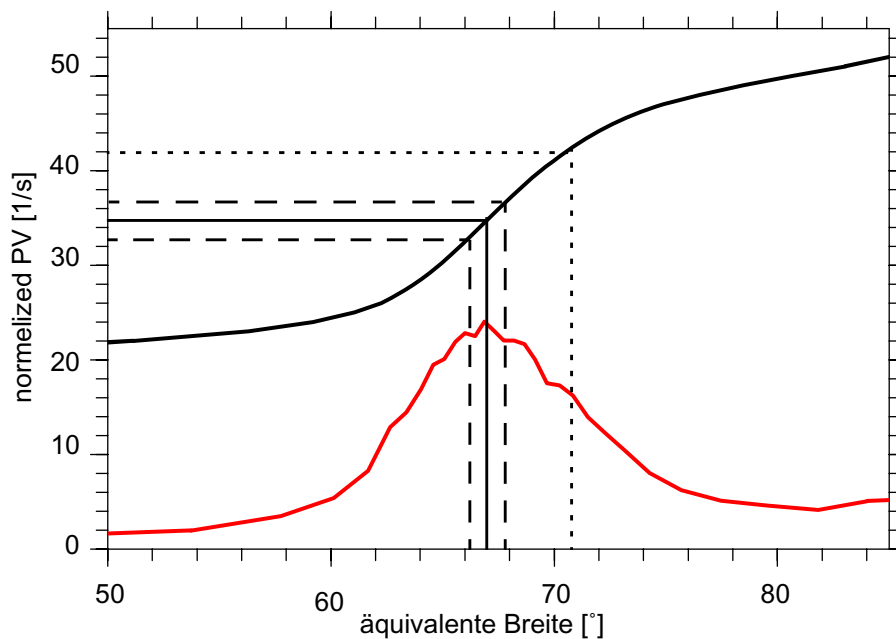


Abbildung 4.3: Graph zur Ermittlung der Wirbelgrenze. Die normierte PV ist über der äquivalenten Breite als schwarze Linie gezeigt. Die Ableitung der schwarzen Linie ist in rot gezeigt.

Matchradius:

Der Vorwärts-Matchradius wird als Abstand zwischen der zweiten Sondenmessung und dem zeitgleichen Punkt der Vorwärtstrajektorie auf der jeweiligen Höhe berechnet. Der maximal zulässige Abstand darf 500 km im Wirbelkern nicht überschreiten. Für den Wirbelrandbereich wird eine Ellipse verwendet. Hier darf der Abstand in Flugrichtung der Trajektorie 500 km betragen, zu den Seiten allerdings maximal 300 km. Dazu wird eine Tangente an den letzten Punkt der Trajektorie gelegt und so der Bereich der Ellipse berechnet.

Divergenz der Schwarmtrajektorien

Wie bereits erwähnt, wird nicht nur eine einzelne Trajektorie zur Verbindung der beiden Messungen berechnet, sondern ein Schwarm mit zusätzlichen sechs Trajektorien. Diese werden ausgehend vom Startpunkt der zentralen Trajektorie bzw. dem Ort der Sondenmessung 100 km in nördlicher, östlicher, westlicher und südlicher Richtung aufgesetzt. Zwei weitere Schwarmtrajektorien werden am gleichen Ort 5 K ober- und unterhalb des Ausgangsniveaus gestartet. Für diese Trajektorien ist bis zur zweiten Sondenmessung eine Abdrift von 1200 km zulässig bzw. 1300 km für Trajektorien, die mit 5 K Höhendifferenz gestartet sind. Für die Auswertung der Niveaus unterhalb von $\Theta = 425$ K wurde die zulässige Divergenz auf 1500 km in beiden Fällen angehoben.

Variation des Ozonmischungsverhältnisses

Das gemessene Profil des Ozon-Mischungsverhältnisses kann unter Umständen starke vertikale Gradienten (z.B. Laminæ) beinhalten. Würde man nun den Ozonwert innerhalb dieses starken Gradienten ablesen, so würde eine kleine Änderung in der Vertikalen zu

einer großen Änderung im Ozonwert führen. Um das zu vermeiden, werden in beiden Ozonprofilen die Variation des Mischungsverhältnisses in der 2, 5 und 10 K Umgebung um den verwendeten Messwert herum kontrolliert.

Für die Arktis gilt:

Ist die Abweichung des Ozonmischungsverhältnis in der ± 2 K Umgebung größer als 20%, in der ± 5 K Umgebung größer als 25%, oder in der 10 K Umgebung größer als 30% bzw. 15%, 20% oder 25% für Höhen größer $\Theta = 500$ K, als das Ozonmischungsverhältnisses des zentralen Niveaus, wird der Match ausgeschlossen.

Für die Antarktis gilt:

Für die Monate mit starkem chemischem Ozonabbau im antarktischen Polarwirbel kommt es zu der Situation, dass kaum noch Ozon in bestimmten Höhen vorhanden ist. Würde man weiterhin die prozentualen Auswahlkriterien anwenden, führt das dazu, dass in diesem Zeitbereich fast alle Ozonsonden ausgeschlossen würden. Um das zu verhindern wurden stattdessen feste Werte genutzt. So wurde ein Match aussortiert, wenn die Variation des Mischungsverhältnisses in der ± 2 K Umgebung größer als 200 ppbv, in der ± 5 K Umgebung größer als 400 ppbv oder in der ± 10 K Umgebung größer 650 ppbv war.

Sondenprofil

Muss ein Ozonwert innerhalb eines Profils interpoliert werden, so darf der Abstand zu den jeweiligen Ausgangspunkten nicht größer als 200 m sein.

Flugdauer

Die maximale Flugdauer einer Trajektorie darf 260 Stunden nicht überschreiten.

4.3 Kampagnenkoordinierung

Kurz vor dem Starttermin einer Matchkampagne werden die meteorologischen Bedingungen in der Stratosphäre analysiert und bewertet. Hat sich ein stabiler Wirbel gebildet bzw. sind die Temperaturen niedrig genug um Ozonabbau erwarten zu lassen, so werden alle Stationen innerhalb des Polarwirbels aufgefordert, während eines kurzen Zeitraums von ca. 4-6 Tagen 2-3 Sonden an einem beliebigen Termin zu starten. Eine Übersicht der Stationen, die an der arktischen Matchkampagne 2002/2003 teilgenommenen haben, ist in Abbildung 6.1 bzw. im Anhang A zu sehen. Die Stationen der antarktischen Matchkampagne 2003 sind in Abbildung 7.1 und Anhang B zu finden. Die Kommunikation mit den Stationen erfolgt in der Regel über E-Mail, Fax und notfalls per Telefon. Während in der Arktis mittlerweile alle beteiligten Stationen über einen permanenten Zugang zum Internet verfügen und das Fax nur noch zur Sicherheit eingesetzt wird, sind die Kommunikationswege zu einigen Stationen in der Antarktis weniger komfortabel.

Wurde eine Ozonsonde an einer Station im Auftrag der Matchkampagne gestartet, so werden die Daten schnellstmöglich an die zentrale Datenbank Zardoz des Norwegischen Instituts für Luftforschung (NILU) übertragen. Ist dies nicht innerhalb von 24-48 Stunden möglich, wird eine formatierte E-Mail mit den Charakteristika des Aufstieges (Zeitpunkt der Sondierung, Höhe und Aufstiegs geschwindigkeit) an das AWI Potsdam geschickt, die von automatischen Routinen erkannt und ausgewertet wird. Um 22.00 MEZ werden die Daten der am Tage auf Zar-

doz abgelegten Sonden automatisch vom NILU via ftp zum AWI Potsdam übertragen. Nun werden von allen Sonden, die in einem die im Zeitfenster aktueller Tag - 8 Tage liegen, Startpunkte berechnet und zur Freien Universität Berlin (FUB) übertragen.

An der FUB sind zu diesem Zeitpunkt die meteorologischen Felder vom EZMW eingetroffen, die durch den Deutschen Wetterdienst weitergeleitet wurden. Die Daten enthalten die horizontalen Winde, die Temperatur und die geopotentielle Höhe auf diskreten isentropen Flächen und sind in einer zeitlichen Auflösung von 6 Stunden erhältlich. Da die genutzten Daten vom EZMW spektral bereitgestellt werden, werden diese auf ein Längen/Breiten Gitter umgerechnet. Die vom EZMW bereitgestellten Daten entsprechen einer maximalen Gitterpunktauflösung von $1,125^\circ \times 1,125^\circ$. Bisher wurden die Trajektorien der arktischen Kampagnen mit meteorologischen Daten einer horizontalen Auflösung von $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ berechnet. Die Auflösung wurde seit der arktischen Matchkampagne 2002/2003 von Dr. Reimer an der FUB auf $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ verfeinert. Aus diesen Daten und den Startpunkten werden nun die Trajektorien für die Koordinierung mit einem 3-Tage Vorhersage Anteil an der FUB berechnet. Die maximale Länge einer Trajektorie beträgt 11 Tage, um den Trajektorienfehler nicht zu groß werden zu lassen. Das Programm berücksichtigt das Absinken der Luftmassen relativ zu den Isentropen, das aus der Abweichung der lokalen Temperatur von der im Strahlungsgleichgewicht erwarteten Temperatur abgeschätzt wird. Da die Vorhersagedaten des EZMW ungenauer werden, je weiter sie vom Tag der Berechnung entfernt sind, wird darauf verzichtet, weitergehende Vorhersagen zu nutzen. Die Trajektorien werden auf neun isentropen Flächen, $\Theta = 390, 400, 410, 465, 475, 485, 540, 550$ und 560 K, berechnet und zusammen mit den umgewandelten EZMW Daten zum AWI Potsdam übertragen. Hier greift nun ein Programm auf die Trajektorien zu, das die möglichen Matche jeder Trajektorie ermittelt. Kommt eine Trajektorie einer Station näher als 300 km, wird diese Koinzidenz bzw. dieser Match mit Qualitätsparametern in eine Liste geschrieben. Dabei werden die Länge der Trajektorie, der Anteil der Sonnenstunden, der Zeitpunkt der geringsten Annäherung und die entsprechende Entfernung zur Station sowie weitere Qualitätsparameter angegeben. Diese Liste wird mit der Verfügbarkeit des Stationspersonals an den Stationen in Einklang gebracht. Da der Start einer Ozonsonde zu einem bestimmten Zeitpunkt für das Personal einer Station schwierig sein kann (meteorologische Bedingungen am Boden, andere Verpflichtungen des Operateurs, etc.), wird nicht nur ein Zeitpunkt, sondern auch ein Zeitfenster um den optimalen Zeitpunkt herum für den Start der Sonde angegeben. Dieses Zeitfenster umfasst den Zeitraum, in dem das Luftpaket im Bereich von 300 km um die Station liegt. Die Kriterien, die nun zur tatsächlichen Auswahl einer bestimmten Gelegenheit führen, sind vielfältig. Die rein physikalischen Kriterien entsprechen denen, die auch für die Aufnahme eines Matches in der abschließenden Auswertung gelten. Sie werden in Abschnitt 4.3.1 vorgestellt. Hinzu kommen Faktoren wie die Anzahl der verfügbaren Sonden an einer Station, die Häufigkeit der Ozonsondenstarts an der Station in den letzten Tagen und die lokale Zeit des Startfensters.

Der Prozess zur Benachrichtigung einer Station zwecks eines Sondenstarts ist aufgrund der zeitaufwendigen Vorbereitung von Ozonsonden zweistufig. In Abbildung 4.4 ist die Koordinierungsarbeit für einen Tag N schematisch dargestellt. Die Koordinierung findet täglich gegen 9.00 Uhr statt. Der Zeitraum B (Abbildung 4.4) liegt von 9.00 Uhr Tag N+1 bis 9.00 Uhr Tag N+2. Für diesen Zeitraum werden Matche herausgesucht und die entsprechenden Stationen per E-Mail und/oder Fax benachrichtigt, so dass 24-48 Stunden zur Vorbereitung des Sondenstarts zur Verfügung stehen. Diese E-Mails werden als "Alert" (Vorwarnung) bezeichnet. Die Daten der ausgesuchten Matche werden gespeichert. Am nächsten Tag setzt darauf ein Programm auf,

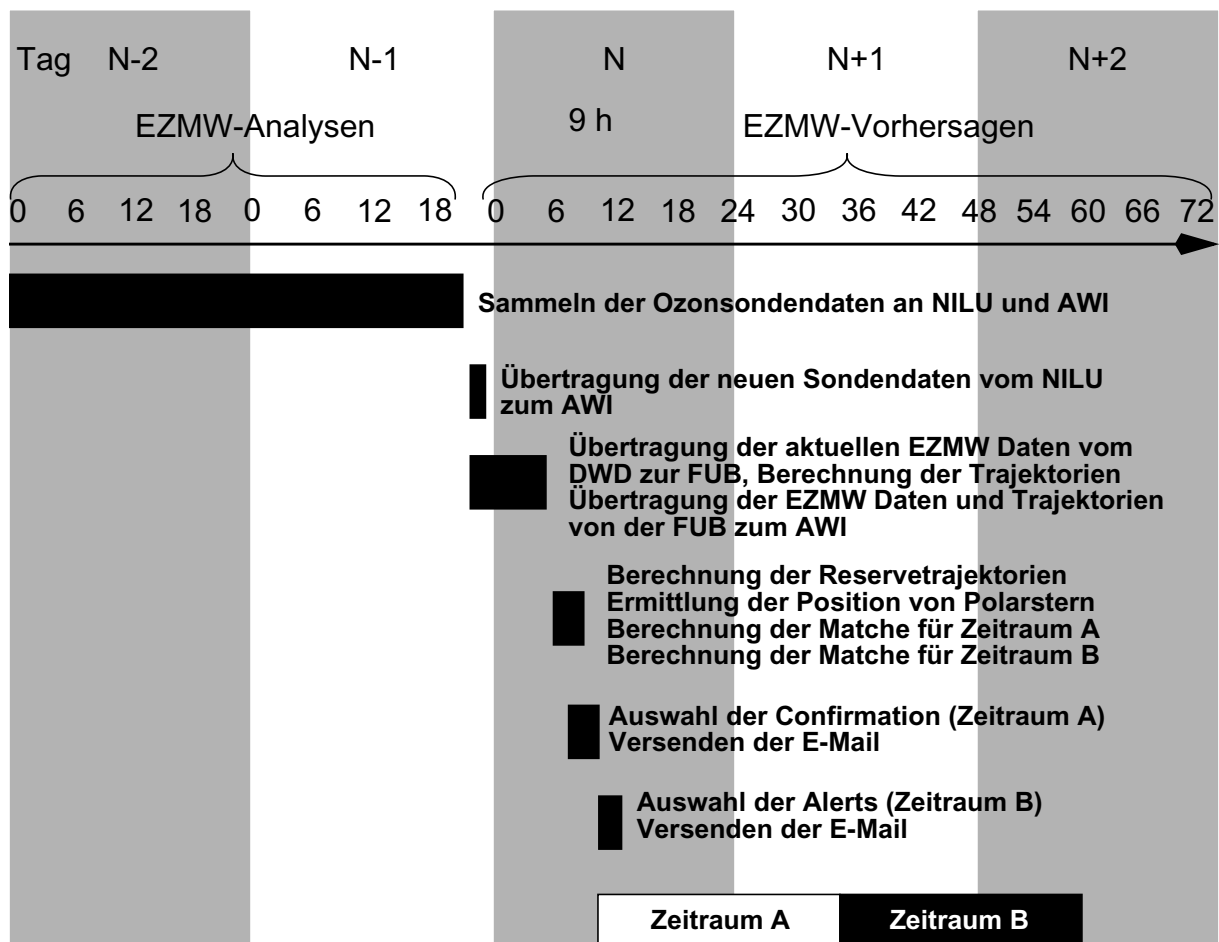


Abbildung 4.4: Übersicht der Kampagnen-Steuerung am Tag N. Im oberen Teil des Diagramms sieht man die zeitliche Einordnung. Jedes EZMW File ist durch die entsprechende Zahl angegeben, wobei zwischen Analyse und Vorhersage unterschieden wird. Die schwarzen Balken im unteren Teil des Bildes stellen Zeitpunkt und Dauer einer Aktion dar.

das die Veränderungen der Matche berechnet, die durch die Neuberechnung der Trajektorien mit den aktuellen Vorhersagedaten entstehen. Erfüllt der Match nach der aktualisierten Datelage noch die physikalischen Kriterien, wird eine zweite E-Mail geschickt, die die neuen Daten übermittelt. Diese Email wird "Confirmation" (Bestätigung) genannt und bezieht sich nun auf den Zeitraum A, also die kommenden 24 Stunden. Haben sich die Daten des Matches mit den neuen Trajektorien drastisch verschlechtert, wird der Sondenstart abgesagt.

Eine Matchkampagne stellt in der Regel hohe Anforderungen an die teilnehmenden Stationen, die diesen aber dankenswerterweise mit großem Engagement erfüllen.

Nach der Koordinierungsphase werden die Trajektorien im Höhenbereich von $\Theta = 340-660$ K in 5 K Schritten mit Analysedaten nachgerechnet. Das Absinken der Luftmassen wird durch Heizraten aus dem Strahlungstransport Modell MIDRAD abgeschätzt, dass an der Universität Cambridge von Dr. G. Millard und an der Universität Leeds von Dr. M. Chipperfield betrieben wird.

4.3.1 Sondenabdrift

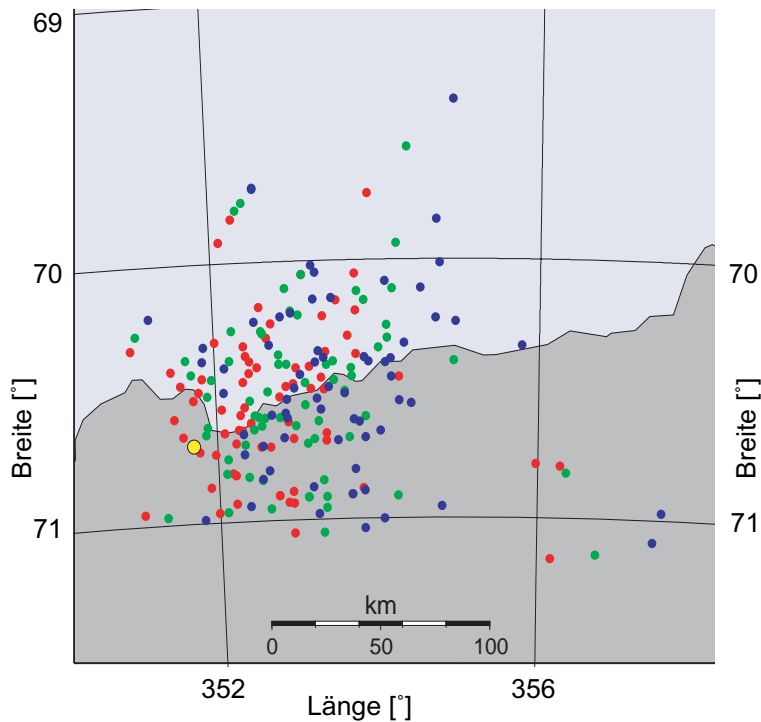


Abbildung 4.5: Gezeigt ist die Sondenabdrift, die aus den Daten der Sonden aufstiege an der Neumayer Station während der antarktischen Matchkampagne, berechnet wurden. Der gelbe Punkt kennzeichnet die Neumayer Station. Rote/grüne/blau Punkte zeigen die Abdrift bis zum 400 K/475 K/500 K Niveau.

Koordinierung berechnet. Für die endgültige Auswertung kann die Berechnung der Sondenposition in einigen Fällen aus den Sondendaten ermittelt werden, da manche Stationen mit Radiosonden ausgerüstet sind, die Windgeschwindigkeit und -richtung während des Aufstieges messen. Ist dies nicht der Fall, wird auf Analysedaten des EZMWs zurückgegriffen. In Abbildung 4.5 ist die Abdrift der an der Neumayer Station gestarteten Ozonsonden gezeigt. Die verschiedenen farbigen Punkte geben die Abdrift bis zum $\Theta = 400, 475, 550$ K Niveau an, die sich aus den gemessenen Winddaten ergibt.

Für die Berechnung des Matchradius während der Koordinierung wurde bisher die Koordinaten der Station genutzt. Eine Sonde, die mit einer mittleren Geschwindigkeit von 5 m/s aufsteigt, braucht 90 Minuten um eine Höhe von 27 km zu erreichen. Bei einer mittleren horizontalen Geschwindigkeit von 30 m/s kann der Ort der Sondenmessung im Mittel um 100-150 km von den Stationskoordinaten abweichen. Um den Effekt von vornherein zu berücksichtigen, wurde eine Routine implementiert, die die horizontale Abdrift der Sonde während des vertikalen Aufstieges berechnet. Dazu wurden die meteorologischen Vorhersagen der EZMW-Daten genutzt. Die Abdrift wurde für die drei Hauptniveaus, $\Theta = 400, 475$ und 550 K, der

4.3.2 Besonderheiten der Arktischen Kampagnenkoordinierung

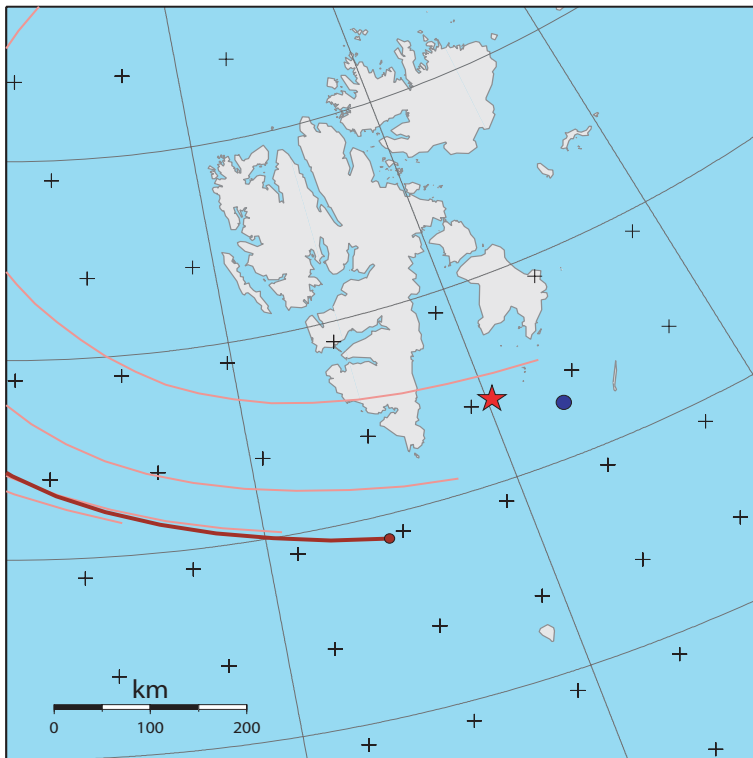


Abbildung 4.6: Koordinierung von Ozonsondierungen an Polarstern (roter Stern). Die Gitterpunkte der Koordinierung sind als schwarze Kreuze zu sehen, in rot die zentrale Trajektorie und als blauer Punkt die Messung der Sonde auf dem entsprechenden Niveau. Als rosa Linien sind die Schwarmtrajektorien dargestellt.

Während der arktischen Matchkampagne 2002/2003 stand ab Ende Februar bis Anfang April das Forschungsschiff Polarstern als beweglicher Ozonsonden-Startplatz im Nordpolarmeer zur Verfügung. Während dieser Schiffsexpedition wurden täglich Ozonsonden im Rahmen eines Ozon-Monitorings gestartet. Die Startzeitpunkte der Ozonsonden konnten variabel gestaltet werden. Es konnte allerdings kein Einfluss auf die Route der Polarstern genommen werden und Position und Kurs des nächsten Tages waren unbekannt. Da die Polarstern nur zu wenigen, unregelmäßig über den Tag verteilten Zeitpunkten über einen Datenaustausch mit der Außenwelt verfügt, musste eine Koordinierung gefunden werden, die alle Freiheitsgrade berücksichtigte, aber trotzdem im Sinne von Match wirken konnte. Auf der Webseite <http://www.awi-bremerhaven.de/MET/Polarstern/psobse.html> ist die jeweils letzte Position der Polarstern abrufbar. In der Regel ist die Position ca. 4-5 Stunden alt. Die letzte Position wurde jeden Morgen automatisch ermittelt. Die maximale Geschwindigkeit des FS Polarstern beträgt 16 kn bzw. ~30 km/h. Würde das Schiff mit maximaler Kraft fahren, sollte es ca. 700 km pro Tag in jede Richtung fahren können. Während der überwiegenden Zeit der Matchkoordinierung wurde ein Gitter mit einer Kantenlänge von 1000 km um den letzten Aufenthaltsort der Polarstern berechnet. Der Abstand zwischen den einzelnen Punkten, für die Matchmöglichkeiten berechnet wurden, lag bei 100 km. Dazu wurde auch der Matchradius auf 50 km beschränkt, um die Listen nicht zu lang werden zu lassen. In Abbildung 4.6 ist ein Beispiel für einen solchen Match gezeigt. Die berechneten Gitterpunkte, für die Matchmöglichkeiten gefunden wurden, sind als schwarze Kreuze angegeben. Der rote Stern gibt die Position von Polarstern an. Die zentrale Trajektorie ist in dunkelrot gezeigt, die von einer Sondierung in Ny-Ålesund ausgehend berechnet wurde. Die Schwarmtrajektorien sind in rosa dargestellt. Der Match hatte nach Neuberechnung der Trajektorien einen Matchradius von ~200 km. Für die Definition des Matchradius siehe Abschnitt 4.2.2.

4.3.3 Besonderheiten der antarktischen Kampagnenkoordinierung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde im antarktischen Winter 2002 eine Probekampagne in der Antarktis aufgesetzt und mit den Stationen durchgeführt. Sinn und Zweck dieses „Trockenlaufs“ war die Eingewöhnung des Stationspersonals, sowie der Verantwortlichen in den Heimatinstituten an die routinemäßigen Aufgaben, die mit der Datenübertragung und Kommunikation während einer Matchkampagne zusammenhängen. Außerdem sollte sichergestellt werden, dass bis zum Winter 2003 alle Stationen ein einheitliches Datenformat nutzen. Im Gegensatz zu den mittleren und hohen Breiten der Nordhemisphäre, in denen ca. 30 Stationen an den Matchkampagnen beteiligt sind, waren es in der Antarktis neun Stationen. Daher war ein reibungsloser Ablauf während der eigentlichen Kampagne im Winter 2003 umso wichtiger.

Für die Probekampagne wurde in Potsdam eine Initialisierung von Ozonsonden simuliert und darauf eine virtuelle Koordinierung aufgesetzt. Die Kampagne dauerte von Anfang August bis Ende September 2002. Dabei war wichtig, dass die Stationen berichteten, ob ein Sondenstart zu dem festgelegten Zeitpunkt möglich gewesen wäre. So bekam man einen Eindruck von den meteorologischen Bodenverhältnissen im Kampagnenzeitraum an den Stationen und den weiteren Verpflichtungen, die die Operateure haben. Während dieser Zeit konnten sowohl an den Stationen, wie auch in Potsdam alle Vorbereitungen für die eigentliche Matchkampagne zu Ende gebracht werden.

Da die Operateure in der Regel nur für ein Jahr an den Stationen sind, wurde im Mai 2003, kurz vor dem eigentlichen Beginn der Kampagne, eine weitere Probekampagne mit dem neuen Personal an allen Stationen durchgeführt.

Im Falle der Südpol-Station Amundsen-Scott wurde auf Grundlage der Alert-E-Mails koordiniert. Durch die geographische Lage (90° S, 102° O) war die Station, während des Kampagnenzeitraums nur einige Stunden am Nachmittag durch einen Kommunikationssatelliten erreichbar, so dass die Confirmation-E-Mails in den meisten Fällen zu spät angekommen ist. Da das Zentrum des Wirbels oft in der Nähe des geographischen Südpols liegt und die Luftmassen im Wirbelzentrum langsamer sind, waren die Startfenster größer und so konnte trotzdem in vielen Fällen eine sinnvolle Koordinierung erzielt werden.

Um die meteorologischen Analysen des EZMW zu verbessern, wurden einigen Stationen mit zusätzlichen Radiosonden ausgerüstet, die in den operationellen EZMW Betrieb eingeflossen sind.

Während es in arktischen Kampagnen bisher keine direkte Rückmeldungen über den Erfolg eines Sondaufstieges gab, wurde eine solche Rückmeldung fester Bestandteil der antarktischen Matchkampagne. Bei einem fehlgeschlagenen Aufstieg wurde eine neue Möglichkeit gesucht und teilweise noch am gleichen Tag ein weiterer Startversuch unternommen.

Kapitel 5

Statistische Auswertung

In diesem Kapitel wird auf die statistischen Grundlagen der Matchtechnik und deren Neuerungen eingegangen. Durch die Entwicklung des Multisensor-Matchansatzes (Kapitel 8) wurde deutlich, dass die bisherige Fehlerrechnung des Ozonsonden-Matchansatzes den eigentlichen Fehler in der Regel unterschätzt. Daher wurde von Lehmann et al. (2005) ein neues Verfahren zur statistischen Fehlerberechnung des Ozonsonden-Matchansatzes entwickelt. Die neue Fehlerrechnung findet in dieser Arbeit ihre erste Anwendung und wird hier kurz skizziert. Um dem Leser den Wechsel zwischen der Veröffentlichung und dieser Arbeit zu erleichtern, wird die Notation der Veröffentlichung in großen Teilen übernommen. Dazu werden die folgenden Variablen definiert:

- N = Anzahl der Ozonmessungen,
- M = Anzahl der Matche,
- \bar{r} = mittlere Ozonabbaurate (Abbau pro Sonnenzeit) für die Region, die durch die Messungen beprobt worden ist,
- c_n = Ozonmischungsverhältnis der n -ten Messung, $n = 1, \dots, N$,
- d_m = Differenz des Ozonmischungsverhältnisses des m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$,
- t_m = Sonnenzeit des m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$,
- $k_1(m)$ = erste Ozonmessung des m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$,
- $k_2(m)$ = zweite Ozonmessung des m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$,
- δ_n = zufälliger Fehler der n -ten Ozonmessung, $n = 1, \dots, N$,
- Δ_m = Nettomatchfehler, der sich aus dem Trajektorienfehler, dem Matchradius und der Abweichung der Ozonabbaurate der m -ten Trajektorie von der mittleren Ozonabbaurate \bar{r} ergibt, $m = 1, \dots, M$,
- ϵ_m = Gesamtfehler des m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$.

Für die weitere Abhandlung werden folgende Vektoren definiert (in fetter Schrift gekennzeichnet), wobei T die transponierte Matrix oder den transponierten Vektor kennzeichnet:

$$\mathbf{c} = (c_1, \dots, c_N)^T, \mathbf{d} = (d_1, \dots, d_M)^T, \mathbf{t} = (t_1, \dots, t_M)^T, \boldsymbol{\delta} = (\delta_1, \dots, \delta_N)^T, \boldsymbol{\Delta} = (\Delta_1, \dots, \Delta_M)^T, \\ \boldsymbol{\epsilon} = (\epsilon_1, \dots, \epsilon_M)^T.$$

5.1 Lineare Regression

Für einen Match wird die Differenz aus den beiden gemessenen Ozonmischungsverhältnissen der zugehörigen Sonden nach Gleichung (5.1) berechnet

$$d_m = c_{k_2(n)} - c_{k_1(n)}. \quad (5.1)$$

Lägen ideale Bedingungen vor, d.h. hätten die Sonden keinen Messfehler, wären die berechneten Trajektorien fehlerfrei und gäbe es keine Abweichung zwischen dem Ort der Messung und dem Ort des Luftpaketes zum Zeitpunkt der zweiten Messung, so wäre d_m gleich der Änderung des Ozons entlang der Trajektorie. Unter der Annahme, dass Mischungsprozesse zu vernachlässigen sind, kann der berechnete Unterschied dann dem chemischen Ozonabbau zugesprochen werden. Allerdings liegen keine idealen Bedingungen vor und die aufgezählten Unsicherheiten führen dazu, dass aus einem einzelnen Match kein chemischer Ozonabbau abgeleitet werden kann. Die Berechnung des Ozonabbaus mit dieser Methode ist dennoch möglich, wenn man genügend Matche zu einer Stichprobe zusammenfasst und die Berechnung des Ozonabbaus auf Grundlage der Statistik durchführt. Da die Prozesse, die zur Ozonzerstörung führen, ausschließlich unter Sonnenlicht stattfinden, kann ein Schätzer \hat{r} der mittleren Ozonabbaurate \bar{r} durch eine lineare Regression der Ozondifferenz d_m gegen die entsprechende Sonnenzeit t_m erhalten werden. Dabei wird die Regression durch den Ursprung (0,0) gezwungen, da für die Ozonzerstörung Sonnenlicht vorausgesetzt wird.

Die lineare Regression sucht den Wert r , der den folgenden Ausdruck minimiert

$$\sum_{m=1}^M (d_m - r \cdot t_m)^2 = (\mathbf{d} - r \cdot \mathbf{t})^T \cdot (\mathbf{d} - r \cdot \mathbf{t}). \quad (5.2)$$

Die Lösung \hat{r} dieses Minimierungsproblems ist durch

$$\hat{r} = \frac{\sum_{m=1}^M t_m \cdot d_m}{\sum_{m=1}^M t_m^2} = \frac{1}{\mathbf{t}^T \mathbf{t}} \cdot \mathbf{t}^T \cdot \mathbf{d}. \quad (5.3)$$

gegeben.

5.2 Fehlerbetrachtung

Die in Kapitel 5.1 erwähnten Fehler, denen ein Match unterworfen ist, sind schematisch in Abbildung 5.1 gezeigt.

Die Ozonmessungen sind fehlerbehaftet, ebenso wie die Druck- und Temperaturmessungen der angehängten Radiosonde, die zur Zuordnung der Ozonwerte auf isentrope Flächen genutzt werden.

Der Trajektorienfehler, der einerseits durch fehlerhafte meteorologische Daten und andererseits durch die endliche Genauigkeit der Integrationsroutine auftritt, wirkt sich in horizontaler und vertikaler Richtung aus. Daher wird das zuerst beprobte Luftpaket durch die Ozonsonde nicht exakt getroffen. Ein Matchradius größer Null hat denselben Effekt. Außerdem kann das lokale Ozonmischungsverhältnis durch kleinskalige Mischungsprozesse vom mittleren Mischungsverhältnis der Umgebung abweichen.

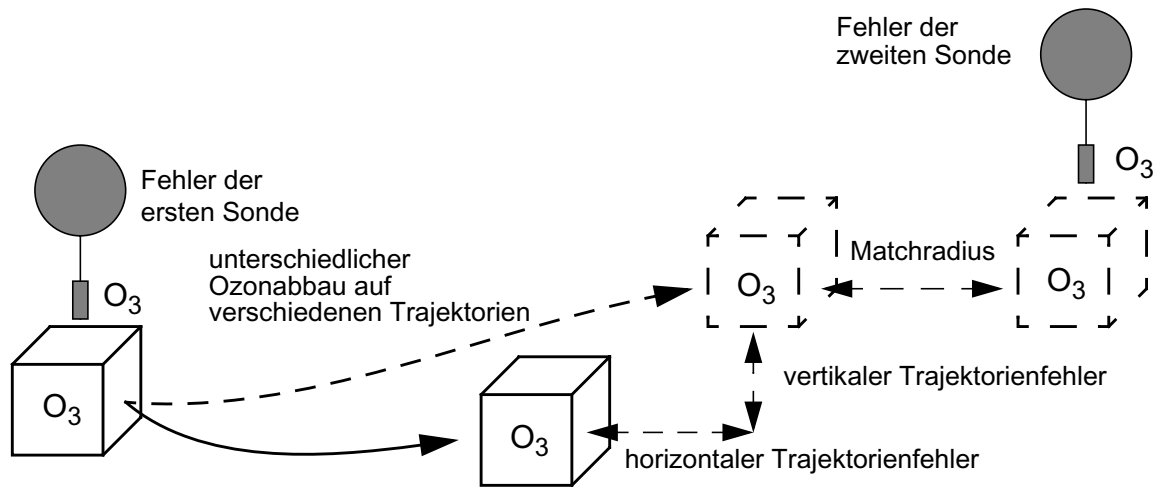


Abbildung 5.1: Schematische Fehlerbetrachtung der Matchtechnik. Während die Luftpakete und der Trajektorienpfad als durchgezogene Linie den fehlerlosen Idealfall annehmen, geben die gestrichelten Pfeile die realen Einschränkungen wieder, denen ein Match unterliegt (aus Lehmann et al., 2005).

Da in der Regel die Chloraktivierung und das Sonnenlicht, also die Bedingungen, die zum Ozonabbau führen, entlang jeder Trajektorie unterschiedlich sind, weicht die Ozonabbaurate einer Trajektorie von der mittleren Ozonabbaurate ab.

Bei dem Messfehler der Sonde (δ_n) handelt es sich um einen Instrumentenfehler. Bei den anderen beiden Punkten handelt es sich um Schwächen der Technik, die zum Nettomatchfehler (Δ_m) zusammengefasst werden. Im vorhergehenden Abschnitt 4.2.2 wurden die Qualitätsparameter vorgestellt, die zu einer Minimierung der Unsicherheiten führen sollen.

Der bisherigen Fehlerrechnung früherer Matchkampagnen lag die Annahme zugrunde, dass die Sondenfehler den Gesamtfehler eines Matches dominieren, also der Nettomatchfehler eine untergeordnete Rolle spielt. Außerdem wurde angenommen, dass die einzelnen Matche statistisch unabhängig und die Fehler der Matche normalverteilt und gleich sind. Da der Fehler der Einzelmessung nicht bekannt und eine Abschätzung des Nettomatchfehlers schwierig ist, wurde der Fehler bisher als Abweichung von der Regression berechnet. Der Gesamtfehler eines Matches ϵ_m erfüllt die Gleichung:

$$d_m = \hat{r} \cdot t_m + \epsilon_m. \quad (5.4)$$

Zur Berechnung des Fehlers der Abbaurate wurde die Kostenfunktion "Chi-Quadrat" χ^2 , Gleichung (5.2), genutzt (Rex, 1997a). Der Schätzer der Varianz dieses Fehlers kann dann wie folgt angegeben werden:

$$\hat{s}_{\hat{r}}^2 = \frac{1}{M-1} \cdot \frac{\chi^2}{\sum_{m=1}^M t_m^2}. \quad (5.5)$$

Der Ausdruck $(M-1)$ kann als Anzahl der Freiheitsgrade der Regression interpretiert werden.

Schon in früheren Matchstudien konnten einzelne Messungen zu mehreren Matches beitragen. Die Auswirkung dieser Abhängigkeit zwischen den Matches wurde bisher ignoriert. Bei dem Satellitenmatch, der in Kapitel 8 vorgestellt wird, nahm diese Abhängigkeit durch die Vielzahl der Matches, an denen einzelne Messungen beteiligt sind, drastisch zu, und der damit verbundene Fehler in der Bestimmung des Abbauratenfehlers wurde offensichtlich. Die hier vorgestellte Fehlerrechnung findet in Kapitel 6 und Kapitel 7 seine Anwendung. Für den Multisensor-Matchansatz wird eine eigene vereinfachte Fehlerrechnung in Kapitel 8 hergeleitet.

In der Veröffentlichung von Lehmann et al. (2005) wurde gezeigt, dass die mittels der linearen Regression berechnete Ozonabbaurate \hat{r} eine erwartungstreue Schätzung der wahren Abbaurates \bar{r} ist.

5.3 Erweiterte Fehlerrechnung

Generell kann man zwischen drei Fällen unterscheiden, wie einzelne Ozonmessungen in einen Match und damit in die lineare Regression eingehen.

Fall 1:

Jede Messung geht nur ein einziges Mal in die Regression ein. In diesem Fall kann die Standardmethode zur Bestimmung des Fehlers angewendet werden, da die Matchfehler unabhängig sind. Die Standardmethode ergibt sich so als Spezialfall der erweiterten Fehlerrechnung.

Fall 2:

Zwei Matches können eine gemeinsame erste oder zweite Messung haben. In diesem Fall sind die Fehler der Matches korreliert. Die Standardmethode würde in diesem Fall die Unsicherheit der Abbaurates unterschätzen.

Fall 3:

Zwei Matches teilen sich eine Messung so, dass sie die erste Messung des ersten Matches und die zweite Messung des zweiten Matches ist oder umgekehrt. Dann sind die Fehler der Matches antikorreliert und können sich teilweise ausgleichen. In diesem Fall wird die Unsicherheit der Ozonabbaurates durch die Standardmethode überschätzt.

Die Verhältnisse innerhalb einer linearen Regression können beliebig kompliziert werden, wenn man davon ausgeht, dass nicht nur jeweils eine Messung, sondern beide in einem Match vorkommenden Messungen an weiteren Matches beteiligt sind.

Die erweiterte Fehlerrechnung sollte also die Abhängigkeit der Matchfehler berücksichtigen und gleichzeitig die Annahme überprüfen, ob der Nettomatchfehler wirklich klein gegenüber den Messfehlern ist und wie sich das auf die Fehlerrechnung auswirkt. Der Matchfehler ϵ_m aus Gleichung (5.4) wird wie folgt beschrieben:

$$\epsilon_m = \delta_{k_2(m)} - \delta_{k_1(m)} + \Delta_m. \quad (5.6)$$

In allen Fällen wird davon ausgegangen, dass die Messfehler statistisch unabhängig und ihre Standardabweichungen gleich sind. Für die Nettomatchfehler wird angenommen, dass diese unabhängig von den Messfehlern, untereinander statistisch unabhängig und die Standardabweichungen unabhängig von m sind. Die Varianz des Messfehlers ist mit σ_δ^2 und die Varianz des Nettomatchfehlers mit σ_Δ^2 gegeben.

Die Terme ϵ_m enthalten nun korrelierte Anteile, die zu den nicht-Diagonalelementen in der Kovarianzmatrix $Cov(\delta)$ beitragen.

Zur Berücksichtigung der Abhängigkeit der Matche wird für jede Regression eine Match-Strukturmatrix \mathbf{M} der Größe $M \times N$ aufgestellt. Diese Strukturmatrix enthält die Information, welche Messung an welchem Match beteiligt ist. Die Zeilen sind den Matches und die Spalten den Ozonmessungen zugeordnet. Für den Fall, dass alle Matche unabhängig wären, wäre $N = 2 \cdot M$. Dabei sind die Elemente der Matrix, m_{mn} , wie folgt definiert:

$$m_{mn} = \begin{cases} 1 & \text{wenn die } n\text{-te Messung als zweite Messung des } m\text{-ten Match eingeht,} \\ -1 & \text{wenn die } n\text{-te Messung als erste Messung des } m\text{-ten Match eingeht,} \\ 0 & \text{wenn die } n\text{-te Messung im } m\text{-ten Match nicht vorkommt.} \end{cases}$$

Gleichung (5.1) kann nun vereinfacht mit Vektoren und Matrizen ausgedrückt werden:

$$\mathbf{d} = \mathbf{M} \cdot \mathbf{c}, \quad (5.7)$$

und Gleichung (5.6) wie folgt:

$$\boldsymbol{\epsilon} = \mathbf{M} \cdot \boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\Delta}. \quad (5.8)$$

Die Kovarianzmatrix des Gesamtmatchfehlers ist dann wie folgt definiert:

$$Cov(\boldsymbol{\epsilon}) = \mathbf{M} \cdot Cov(\boldsymbol{\delta}) \cdot \mathbf{M}^T + Cov(\boldsymbol{\Delta}). \quad (5.9)$$

Setzt man die Ausdrücke $Cov(\boldsymbol{\delta}) = \sigma_\delta^2 \cdot \mathbf{I}$ und $Cov(\boldsymbol{\Delta}) = \sigma_\Delta^2 \cdot \mathbf{I}$ in Gleichung (5.9) ein, wobei \mathbf{I} die Identitätsmatrix in entsprechender Größe ($N \times N$ oder $M \times M$) ist, so erhält man für als Kovarianzmatrix des Gesamtmatchfehlers:

$$\begin{aligned} Cov(\boldsymbol{\epsilon}) &= \mathbf{M} \cdot \sigma_\delta^2 \cdot \mathbf{I} \cdot \mathbf{M}^T + \sigma_\Delta^2 \cdot \mathbf{I} \\ &= \sigma_\delta^2 \cdot \mathbf{M} \cdot \mathbf{M}^T + \sigma_\Delta^2 \cdot \mathbf{I} \end{aligned} \quad (5.10)$$

Die Matrix $\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}^T$ kann in zwei Matrizen gespalten werden, um so eine Trennung der Diagonalelemente und der Nicht-Diagonalelemente zu erreichen.

$$\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}^T = 2 \cdot \mathbf{I} + \boldsymbol{\Omega} \quad (5.11)$$

Die Matrix $\boldsymbol{\Omega}$ ist symmetrisch und enthält die Nicht-Diagonalelemente. Definiert man die Varianz des Gesamtmatchfehlers als

$$\sigma^2 = \sigma_\Delta^2 + 2\sigma_\delta^2, \quad (5.12)$$

so erhält man nach Einsetzen der Gleichungen (5.11) und (5.12) in Gleichung (5.10):

$$Cov(\boldsymbol{\epsilon}) = \sigma^2 \cdot \mathbf{I} + \sigma_\delta^2 \cdot \boldsymbol{\Omega}. \quad (5.13)$$

Zur Berechnung von $Cov(\epsilon)$ nach Gleichung (5.13) müssen erwartungstreue Schätzungen der Ausdrücke für σ^2 und σ_δ^2 gefunden werden.

Dies ist in der Veröffentlichung von R. Lehmann et al., (2005) vorgestellt und kann dort nachgelesen werden. So erhält man ein Gleichungssystem mit jeweils zwei Gleichungen und zwei Unbekannten, die den Schätzer der Varianz für den Gesamtmatchfehler und den Schätzer für die Varianz der Messungen enthält.

Setzt man diese gefundenen Ausdrücke in die Gleichung für die Standardabweichung, siehe Lehmann et al., (2005)

$$\sigma_{\hat{r}}^2 = \frac{1}{\mathbf{t}^T \mathbf{t}} \cdot (\sigma^2 + \omega \cdot \sigma_\delta^2) \quad (5.14)$$

ein, wobei $\omega = \frac{\mathbf{t}^T \Omega \mathbf{t}}{\mathbf{t}^T \mathbf{t}} = \frac{\sum_{jm} \omega_{jm} \cdot t_j \cdot t_m}{\sum_{m=1}^M t_m^2}$ ist und ω_{jm} die Elemente von Ω sind, erhält man

für den Schätzer des Gesamtfehlers der Ozonabbaurate folgende Gleichung:

$$\hat{s}_{\hat{r}}^2 = \frac{1}{\mathbf{t}^T \mathbf{t}} \frac{\{(\omega_1 - 2 \cdot \omega_2 + 2\omega^2) \cdot s_1 + m \cdot \omega \cdot s_2\}}{(M - 1) \cdot (\omega_1 - 2 \cdot \omega_2) + (M - 2) \cdot \omega^2} \quad (5.15)$$

mit

$$\begin{aligned} s_1 &= \sum_{m=1}^M (d_m - \hat{r} \cdot t_m)^2, \\ s_2 &= \sum_{j=1}^M \sum_{m=1}^M \omega_{jm} \cdot (d_j - \hat{r} \cdot t_j) \cdot (d_m - \hat{r} \cdot t_m), \\ \omega_1 &= \sum_{j=1}^M \sum_{m=1}^M \omega_{jm}^2, \\ \omega_2 &= \frac{(\Omega \cdot \mathbf{t})^T \cdot (\Omega \cdot \mathbf{t})}{\mathbf{t}^T \mathbf{t}}. \end{aligned}$$

Für den Ozonsonden-Matchansatz bringt die Anwendung von Gleichung (5.15) im Mittel eine Vergrößerung der Fehler der Abbauraten von ~15%, wie Lehmann et al. (2005) an ca. 90 Regressionen aus vier verschiedenen Jahren gezeigt haben. Für diese Regressionen trägt der Anteil des Nettomatchfehlers 1/3 zum Gesamtfehler bei, genauso viel wie eine Sondenmessung.

Kapitel 6

Arktische Matchkampagne 2002/2003

Während des Winters 2002/2003 wurden ca. 800 Ozonsonden an über 30 Stationen in der Arktis und in den mittleren Breiten gestartet. Über 450 dieser Sondierungen waren koordinierte Sondaufstiege, die aufgrund von Trajektorienrechnungen gestartet und so in ein bereits beprobtes Luftpaket gelenkt werden sollten. In Abbildung 6.1 ist das Stationsnetzwerk des Winters 2002/2003 gezeigt, d.h. alle Stationen, die bereit waren während des Kampagnenzeitraums (Ende November bis Mitte März) koordinierte Ozonsondaufstiege durchzuführen und / oder die Daten durchgeführter Ozonsondaufstiege zur Verfügung zu stellen. Als südlichste Stationen starteten Payerne (PA) und Hohenpeissenberg (HO) im Januar und März Ozonsonden für die Match-Kampagne. Haute Provence (HP), San Pietro Capofiume (CA), Thessaloniki (TL) und Athen (AT) lagen zu weit südlich, um im Winter 2002/2003 einen Beitrag für die Match-Kampagne zu liefern. Eine Übersicht der Stationen ist in Anhang A gegeben. Im Falle der arktischen Matchkampagne lag einer der Schwerpunkte auf der Messung von Ozonabbauraten im Monat Dezember, da für diesen Zeitraum bisher keine Abbauraten mit der Matchtechnik ermittelt wurden.

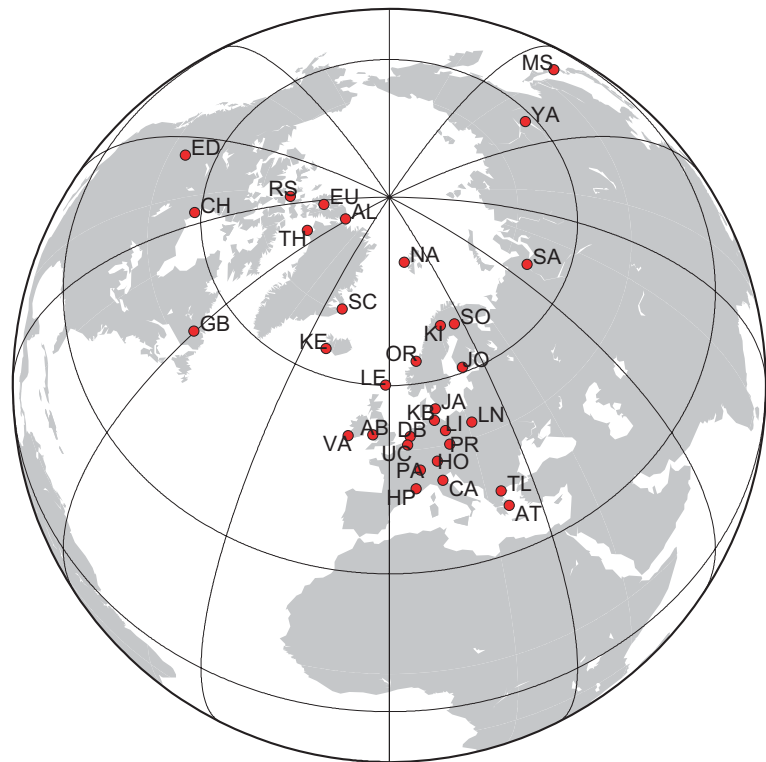


Abbildung 6.1: Übersicht über die Stationen, die an der arktischen Matchkampagne 2002/2003 teilgenommen haben.

6.1 Meteorologie des arktischen Winters 2002/2003

Der Winter 2002/2003 wies eine starke Variabilität der meteorologischen Bedingungen in der mittleren und unteren Stratosphäre auf. In Abbildung 6.2 (a) ist die zeitliche Entwicklung von A_{PSC} (die Fläche mit Temperaturen niedriger als T_{NAT}) für den Höhenbereich $\Theta = 350-700$ K gezeigt. In Abbildung 6.2 (b) ist A_{PSC} für $\Theta = 475$ K für diesen und frühere Winter gezeigt.

Der Winter 2002/2003 startete sehr kalt wie die Minimumtemperaturen in Abbildung 2.3 belegen. Bereits im November wurde auf der 30 hPa Fläche das niedrigste Monatsmittel der Temperatur seit 1964 gemessen (Naujokat und Grunow, 2003). Im Dezember war A_{PSC} auf $\Theta = 475$ und 550 K so groß, wie in keinem anderen Jahr des *EZMW-ReAnalysis 15* (ERA 15) Datensatzes, der bis zum Jahr 1979 zurückreicht.

Im November / Dezember 2002 lag das Zentrum des Polarwirbels in der unteren und mittleren Stratosphäre meist über Grönland und der Europäischen Arktis. In Abbildung 6.3 sind PV-Karten für sechs Tage während des Winters 2002/2003 dargestellt. Der PV-Wert der Wirbelgrenze am 5. Dezember 2002 für diesen Tag (Abbildung 6.3 (a)) lag bei einer normierten PV von 30 s^{-1} .

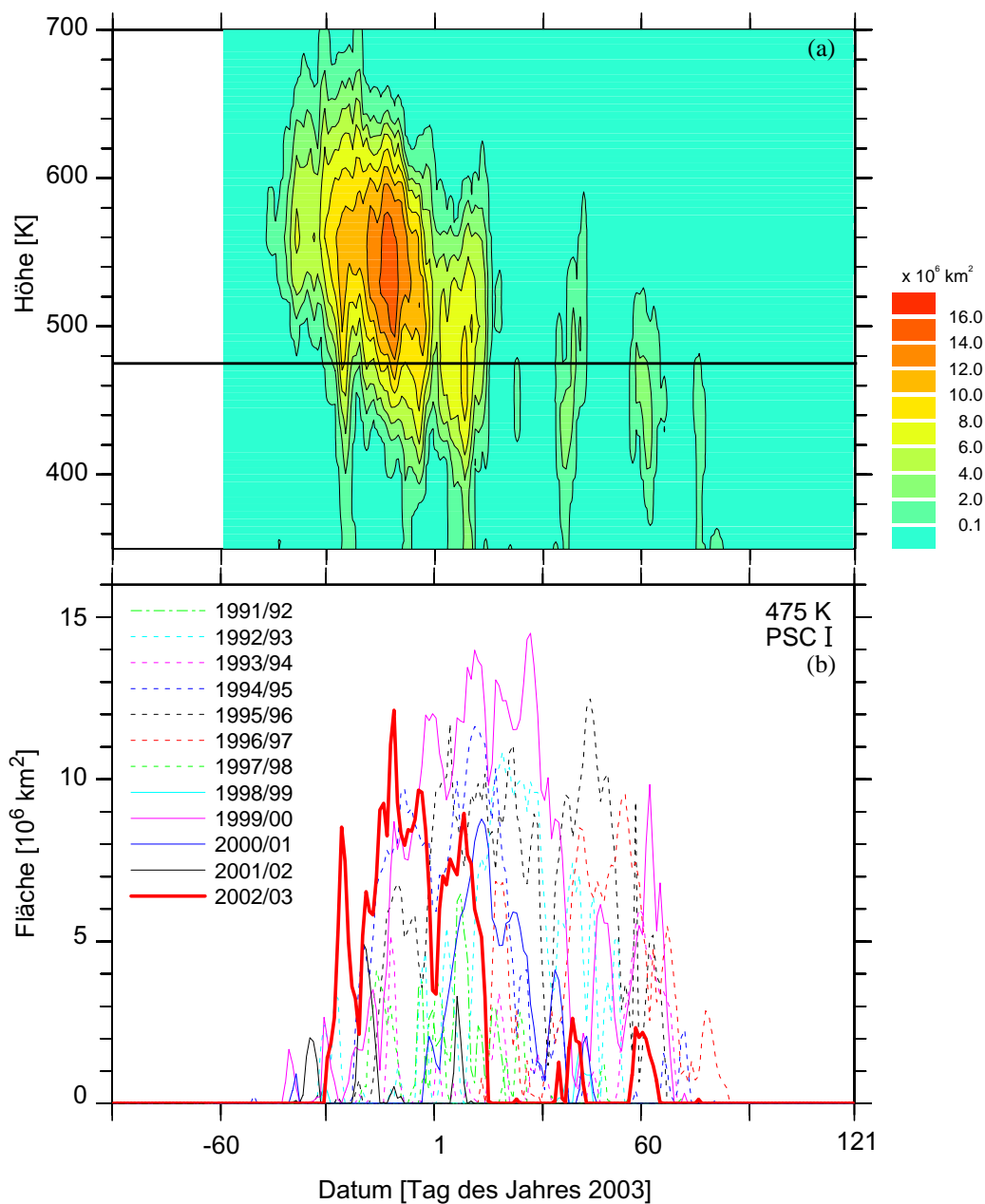


Abbildung 6.2: (a) Die zeitliche Entwicklung von A_{PSC} für den Höhenbereich von $\Theta = 350-700 \text{ K}$ im arktischen Winter 2002/2003. Die Größe der Fläche auf dem jeweiligen Niveau ist farbig codiert. Das $\Theta = 475 \text{ K}$ Niveau ist mit einem Strich gekennzeichnet. In (b) wird A_{PSC} des $\Theta = 475 \text{ K}$ Niveaus (rot) mit früheren Jahren verglichen. Dabei geht der Vergleich bis 1991/1992 zurück.

Darauf wird am Ende des Abschnittes genauer eingegangen. Die zeitliche Entwicklung dieser Fläche ist in Abbildung 6.2 abzulesen. Zum Jahreswechsel gab es die erste kleine Erwärmung, die nur die obere Stratosphäre beeinflusste. Mit einem Rayleigh Lidar in Ny-Ålesund wurden am 27. Dezember 2002 Temperaturen von ~ 300 K in ~ 40 km Höhe gemessen (persönliche Mitteilung Müller, 2004). In Abbildung 6.2 (b) erkennt man eine deutliche Verringerung von A_{PSC} im $\Theta = 475$ K Niveau für diesen Zeitraum, aber auch eine fast ebenso starke Vergrößerung einige Tage später. Die PV-Karte in Abbildung 6.3 (b) vom 29. Dezember 2002 zeigt keine Beeinflussung der Stärke des Wirbels im $\Theta = 475$ K Niveau.

Mitte Januar wurde der Wirbel durch eine große Erwärmung gestört. Die Erwärmung setzte sich bis zur mittleren Stratosphäre durch und sorgte dort für eine Aufspaltung des Wirbels und eine Zirkulationsumkehr (Ostwinde) zwischen 60° Nord und dem Nordpol. Am 21.01.03 (Abbildung 6.3 (c)) sind die Wirbelhälften nur noch über die 30-36 PVU Fläche verbunden. Die Existenztemperaturen für PSC Typ Ia wurden von da an nur noch an einigen Tagen Anfang Februar und Anfang März unterschritten, wie in Abbildung 6.2 zu sehen ist. Mitte Februar ereignete sich die nächste kleine Erwärmung, die zu einer kompletten Aufspaltung des Wirbels in der untersten Stratosphäre für neun Tage führte. Die zwei Tiefdruckzentren lagen über Kanada und Sibirien, wie die PV-Karte vom 17. Februar 2003 zeigt (Abbildung 6.3 (d)). Schließlich ist in Abbildung 6.3 (e) der 15. März 2003 dargestellt, einer der letzten Tage der Matchauswertung. Der Wirbel ist bereits in Richtung Osten verschoben. Da es in der Region wenige Ozonsondenstationen gibt, der Wirbel bereits geschwächt war und die Temperaturen zu diesem Zeitpunkt über T_{NAT} lagen, wurde die aktive Kampagnenkoordinierung eingestellt.

Die endgültige Erwärmung 2003 begann Ende März und dauerte bis Mitte April. Solang blieb der Wirbel intakt und in der Nähe des Nordpols gelegen, da er an ein Kältezentrum in der mittleren und unteren Stratosphäre gekoppelt war. Abbildung 6.3 (f) zeigt den 18. April 2003. Der Wirbel bricht in zwei Teile und die Umstellung auf Ostwinde in der Stratosphäre über dem Polarkreis beginnt.

6.1.1 Die Wirbelgrenze

Die meisten der bisherigen Matchkampagnen begannen in einem stabilen und bereits voll entwickelten Wirbel, so dass die Außengrenze des Wirbels bei einer normierte PV von 36 s^{-1} für das $\Theta = 475$ K Niveau angesetzt werden konnte. Im Winter 2002/2003 lag einer der Schwerpunkte auf der Berechnung von Ozonabbauraten im Dezember, also während der Aufbauphase des Wirbels. In dieser Phase wächst der maximale PV Gradient stetig mit der Zeit. Für den Zeitraum von Ende November bis Ende März wurde die Lage des maximalen PV-Gradienten für die Höhen $\Theta = 435, 475$ und 550 K nach der in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Methode ermittelt. Die Lage des maximalen PV-Gradienten stieg von 28 s^{-1} am 28. November auf 36 s^{-1} am 9. Januar an. Im Anschluss schwankt die Wirbelgrenze um die normierte PV von 36 s^{-1} und wird daher konstant bei 36 s^{-1} angenommen (Tabelle 6.1). Ab Mitte März nimmt der Gradient schlagartig ab und eine Wirbelgrenze kann nicht mehr genau bestimmt werden.

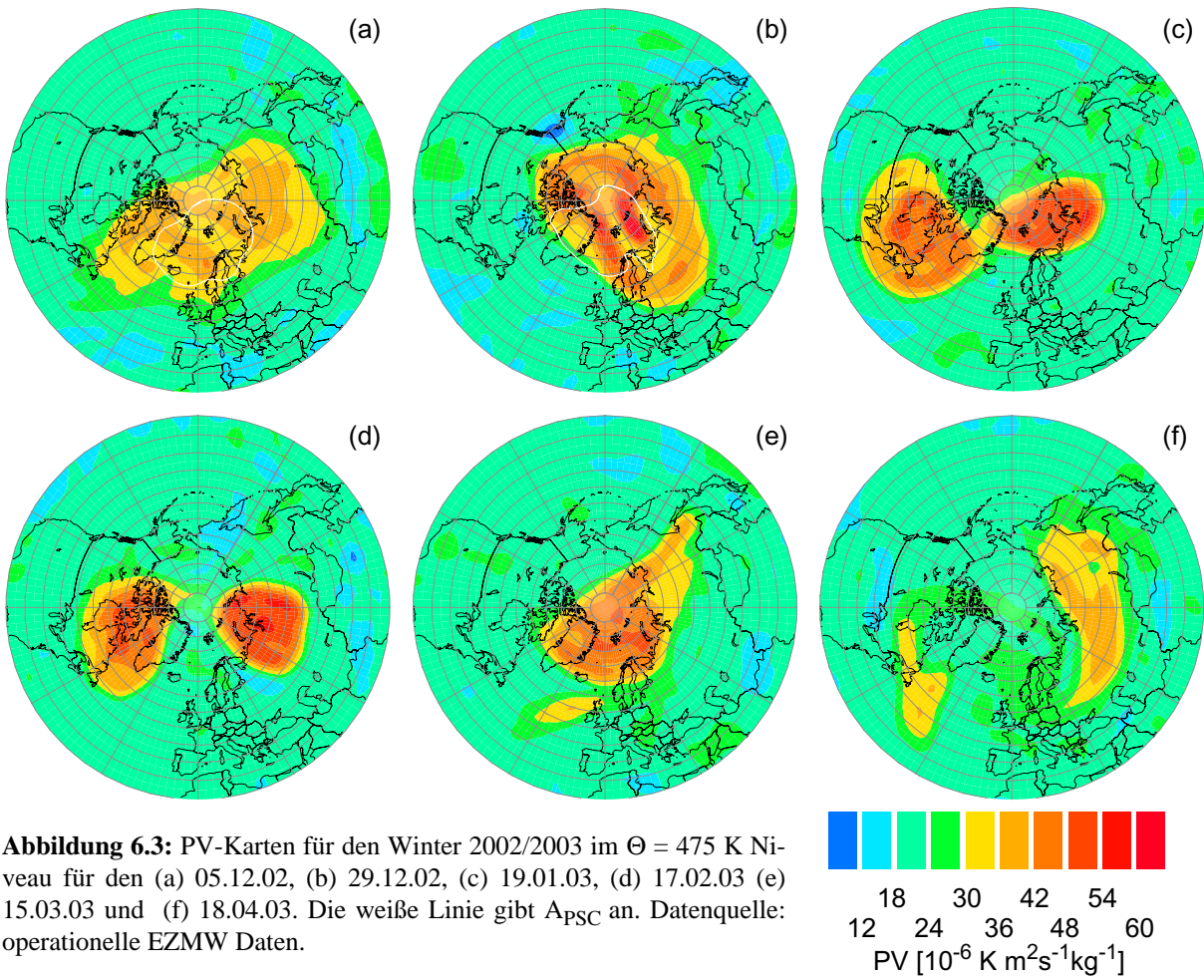


Tabelle 6.1: Die normierte PV der Wirbelaussenkante, die für die Match-Auswertung im Winter 2002/2003 genutzt wurde.

Datum	Datum [Tag des Jahres 2003]	nPV [s^{-1}]
29.11.2002	-33	28
06.12.2002	-26	30
13.12.2002	-19	31
20.12.2002	-12	32
27.12.2002	-5	33
02.01.2003	2	34
09.01.2003	9	36
16.03.2003	75	36

6.1.2 Die Wirbelfläche

In Abbildung 6.4 ist die gemittelte Wirbelfläche für die in Tabelle 6.1 aufgeführten normierten PV-Werte auf dem $\Theta = 475$ K Niveau gezeigt. Bis zum 9. Januar wird die Wirbelfläche kontinuierlich kleiner, was ein Effekt der Anhebung der Wirbelgrenze ist. Mitte Januar führt die große Erwärmung zu einer sprunghaften Verkleinerung des Wirbels. Bis Mitte Februar behält der Polarwirbel eine Größe von ca. 20×10^6 km², die sich aufgrund einer weiteren kleinen Erwärmung im Februar erneut verkleinert. Im Anschluss bleibt die Größe konstant bei ca. 17×10^6 km² bzw. steigt leicht an. Anfang März verkleinert ein weiterer dynamischer Impuls die eingeschlossene Fläche der 36 s^{-1} Isolinie. Ab diesem Zeitpunkt führt eine kontinuierliche dynamische Aktivität zu einer stetigen Verkleinerung des Wirbels.

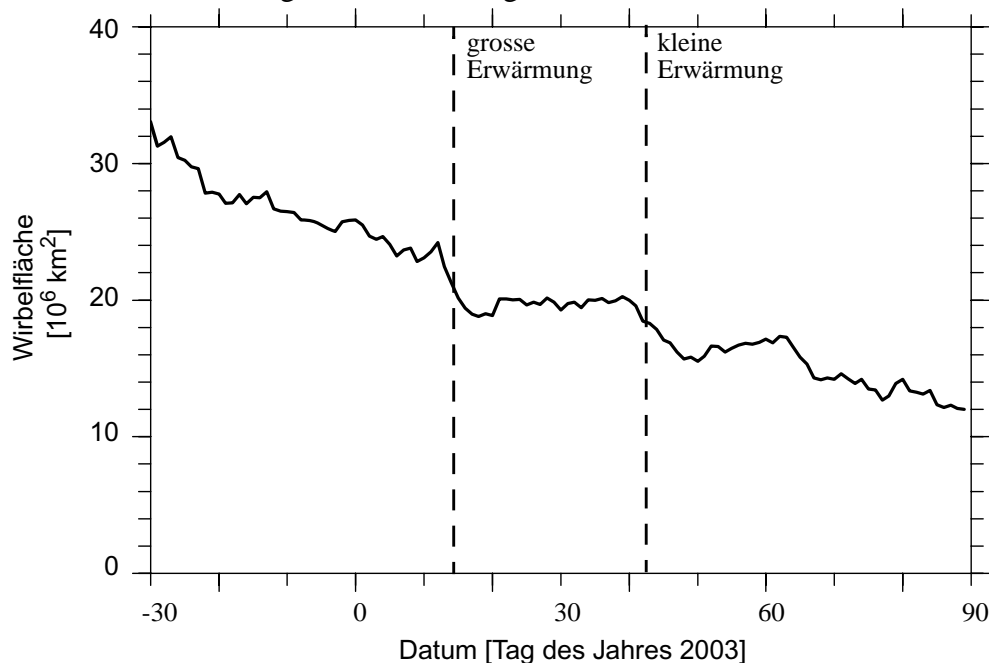


Abbildung 6.4: Gemittelte Wirbelfläche, die anhand von Tabelle 6.1 erstellt wurde. Datenquelle: operationelle EZMW Daten

6.2 Matchergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Matchkampagne in der Arktis im Winter 2002/2003 vorgestellt. Es wird sowohl die zeitliche Entwicklung der Ozonabbauraten sowie die vertikale Verteilung des Ozonabbaus innerhalb des Polarwirbels beschrieben. Darüber hinaus werden verschiedene Studien vorgestellt, die die Sensitivität der Matchmethode auf andere meteorologische Parameter untersuchen.

6.2.1 Verteilung der Matche im Wirbel

In Abbildung 6.5 ist die Verteilung der Matche innerhalb des Wirbels aufgetragen, die für die analysierten Höhengniveaus $\Theta = 450$, 475 und 500 K zur Berechnung der Ozonabbauraten genutzt wurden.

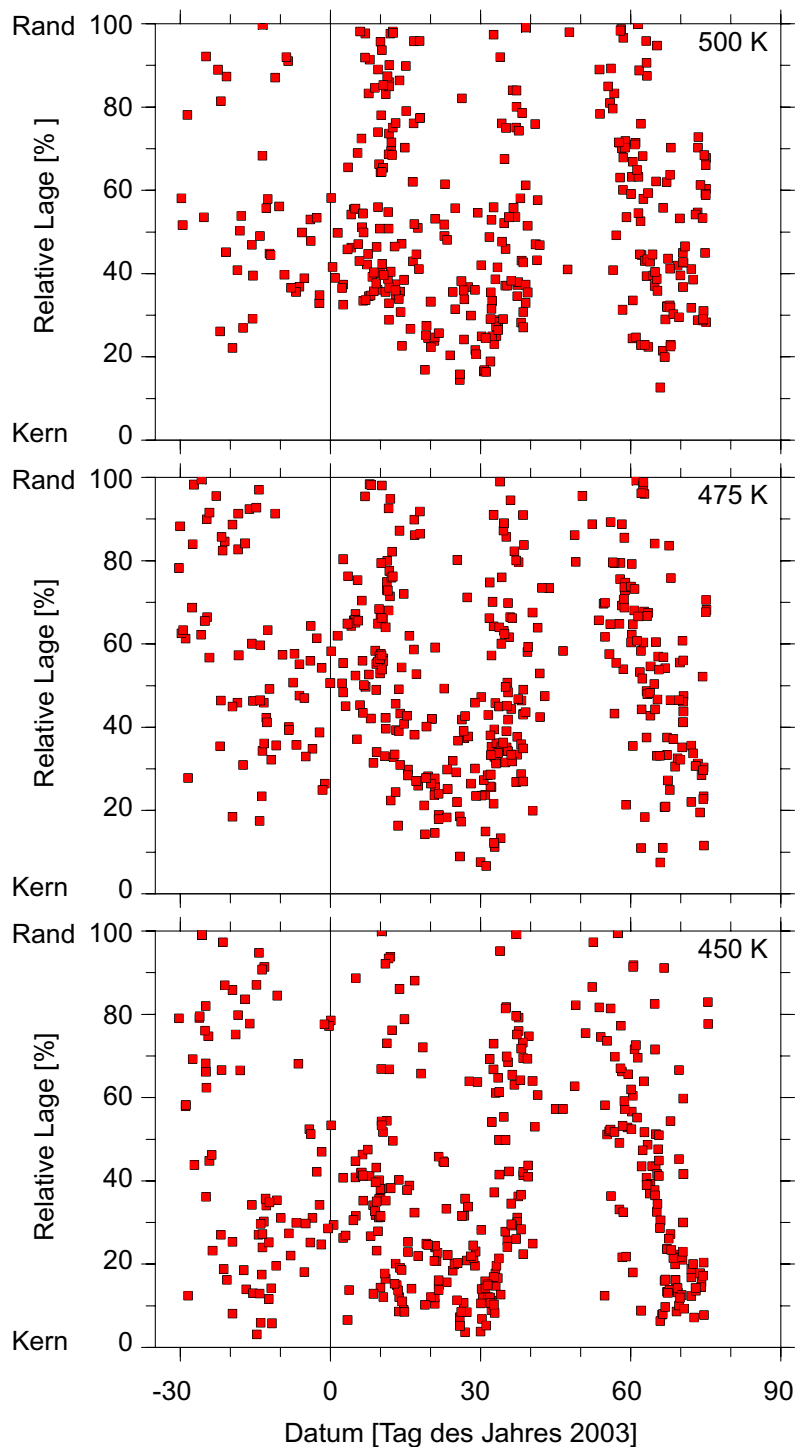


Abbildung 6.5: Die roten Punkte geben die relative Lage der Messung innerhalb des prozentualen PV-Feldes für die drei Höhen $\Theta = 450, 475$ und 500 K wieder.

Für die Größe der relativen Lage wird die Gesamtfläche des Wirbels errechnet, die durch die Wirbelgrenze umschlossen wird. Der Flächeninhalt der so umschlossenen PV-Isolinien wird bestimmt und durch die Gesamtfläche des Wirbels geteilt und in Prozent umgerechnet. So entspricht der Wirbelrand 100% der prozentualen relativen Lage, während niedrigere Prozentwerte entsprechend näher am Wirbelzentrum liegen. Dieser Skala wird nun die gemittelte normierte

PV der Trajektorie eines Matches zugeordnet. Die relative Lage der Matche im PV-Raum für die drei Höhen zeigt, dass der Wirbel auf dem $\Theta = 450$ und 475 K Niveau während des Kampagnenzeitraums fast homogen beprobt worden ist. Auf dem $\Theta = 500$ K Niveau wurden die inneren 10-15% des Wirbels nicht erfasst. Auf allen Niveaus zeigen die Zeiträume Mitte Januar und Mitte Februar eine Ausdünnung der Matche, da der Wirbel durch eine große und kleine Erwärmung gestört wurde. Ozonsonden wurden dennoch unverändert oft gestartet, allerdings wurde eine größere Anzahl von Matchen aussortiert, bei denen die Qualitätsparameter nicht erfüllt wurden. Die geringere Dichte der Matche um den Jahreswechsel ist auf die Ruhezeiten der Ozonsondenstationen zurückzuführen.

In Abbildung 6.6 wird der Sonneneinfall im Polarwirbel auf dem $\Theta = 475$ K Niveau gezeigt. Die Linie in schwarz zeigt die gemittelte Sonnenscheindauer pro Tag im Wirbel. Die grüne Linie zeigt die Sonnenscheindauer in den äußeren 50% und die blaue Linie in den inneren 50% des Wirbels an. Als Wirbelgrenze dienen die in Tabelle 6.1 angegebenen Grenzen. Dabei sinkt die Sonnenscheindauer im Wirbel von Anfang November von $\sim 22\%$ auf $\sim 16\%$ Ende Dezember ab und steigt dann bis auf 80% Ende März an. Zum Zeitpunkt der Sonnenwende fällt noch Licht in den Polarwirbel, was darauf zurückzuführen ist, dass in 20 km die Sonne bereits ab einem Sonnenzenithwinkel von 95° sichtbar ist. Außerdem ist der arktische Wirbel die meiste Zeit in Richtung Süden verschoben. Die roten Quadrate zeigen die mittlere Sonnenscheindauer der Trajektorien, die zur Bestimmung der Ozonabbauraten genutzt wurden. Offensichtlich stimmt die mittlere Sonnenscheindauer der Trajektorien gut mit der errechneten mittleren Sonnenscheindauer des Wirbels überein. Dadurch wird die Annahme gestützt, dass die im Anschluss gezeigten Ozonabbauraten als Wirbelmittel interpretiert werden können.

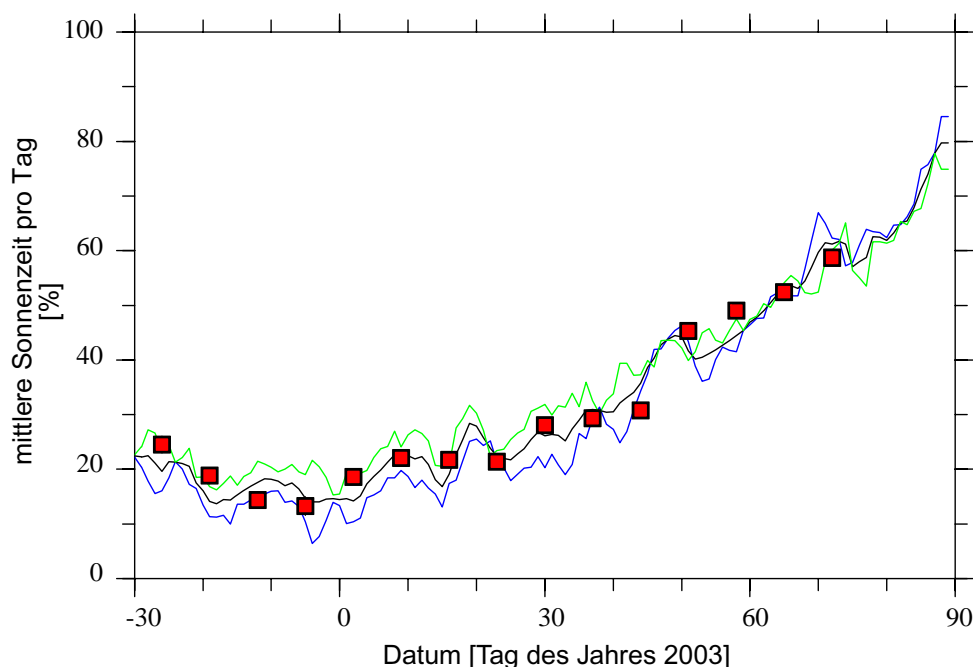


Abbildung 6.6: Mittlere Sonnenzeit pro Tag im arktischen Polarwirbel 2002/2003 auf dem $\Theta = 475$ K Niveau. Der gemittelte Anteil des Sonnenlichtes pro Tag im die gesamten Polarwirbel ist als schwarze Linie aufgetragen. Die grüne Linie zeigt die äußeren 50%, die blaue Linie die inneren 50% des Polarwirbels. Darüber ist in roten Quadraten der Anteil des Sonnenlichtes der verwendeten Matchtrajektorien auf dem $\Theta = 475$ K Niveau gezeigt. Datenquelle : operationelle EZMW-Daten.

6.2.2 Ozonabbauraten

Es wurden Ozonabbauraten im Bereich von $\Theta = 400\text{-}550\text{ K}$ Niveau bestimmt. Allerdings sind auf den Niveaus unterhalb von $\Theta = 450\text{ K}$ die Ozonabbauraten erst im Januar mit geringen statistischen Fehlern zugänglich. Die Abbauraten auf den Niveaus größer $\Theta = 500\text{ K}$ sind den ganzen Winter über mit größeren statistischen Unsicherheiten belastet. Daher werden im Folgenden nur die Daten der Niveaus $\Theta = 450, 475$ und 500 K gezeigt.

Die berechneten Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde (Abbildung 6.7) sowie die korrespondierenden Ozonabbauraten in ppbv / Tag (Abbildung 6.8) des Winters 2002/2003 sind für die Höhenniveaus $\Theta = 450, 475$ und 500 K dargestellt. Für die Ermittlung der Ozonabbaurate / Tag werden die Abbauraten pro Sonnenstunde mit der mittleren Sonnenscheindauer im Polarwirbel pro Tag multipliziert. Jedes einzelne Diagramm für ein Höhenniveau ist in zwei Teilabbildungen unterteilt. Der untere Graph gibt in roten Kästchen die Ozonabbauraten mit dem in Kapitel 5 dargestellten statistischen 1σ Fehler wieder. Unter der entsprechenden Abbaurate steht als kleine Zahl die Anzahl der in die Regression eingehenden Matche.

Die einzelnen Datenpunkte repräsentieren die Steigung der linearen Regression, die auf Matchen innerhalb eines Höhenintervalls von $\pm 10\text{ K}$ und einer zeitlichen Mittelung von ± 7 Tagen um den angegebenen Wert beruhen. Die erste Ozonabbaurate ist für den 06. Dezember 2002 bzw. Tag -26 angegeben. In diesen Punkt gehen Matche vom Tag -33 bis Tag -19 ein. Auf diese Weise ist nur jeder zweite Punkt in den gezeigten Graphen unabhängig. Die letzte Abbaurate ist für den 12. März angegeben. Im oberen Teil jedes Graphen ist A_{PSC} eingezeichnet. Als dunkelblaue Flächen sind die Flächen eingezeichnet, in denen die Temperatur niedriger als T_{Eis} war. Diese Fläche wird im Folgenden A_{Eis} genannt.

Im Laufe des Monats Dezember steigen die Ozonabbauraten auf allen Niveaus an und erreichen Werte zwischen 2 ppbv / Sonnenstunde bei $\Theta = 500\text{ K}$ und 4 ppbv bei $\Theta = 475\text{ K}$, was $\sim 8\text{-}20$ ppbv pro Tag entspricht. Die größten Abbauraten pro Sonnenstunde werden im Januar bestimmt und erreichen Werte bis 6 ppbv auf den Höhen zwischen $\Theta = 450$ und 500 K . Das entspricht auf dem $\Theta = 500\text{ K}$ Niveau einer maximalen Ozonabbaurate von ~ 35 ppbv pro Tag. Abgesehen vom $\Theta = 425\text{ K}$ Niveau nehmen die Ozonabbauraten im Februar ab und erreichen mit Null verträgliche Werte um den Tag 50. Diese Abbaurate ist stark von der kleinen Erwärmung beeinflusst, so dass nur wenige Matche die Qualitätsparameter erfüllen und in die Regression eingehen. Gleichzeitig nehmen die statistischen 1σ Fehler in den oberen Höhenniveaus zu. Nach der kleinen Erwärmung im Februar gehen die Abbauraten auf den dargestellten Höhenniveaus auf Null zurück.

Auf dem $\Theta = 425\text{ K}$ Niveau sind die Ozonabbauraten generell etwas kleiner und erreichen den Maximalwert am Tag 44 mit $3,1 \pm 1,0$ ppbv pro Sonnenstunde, entsprechend $27,3 \pm 8,4$ ppbv pro Tag. Der zeitliche leichte Versatz der Ozonabbauraten lässt sich durch das Absinken von Luftmassen, die aktivierte Chlor-Spezies mit sich führen, erklären.

6.2.3 Integrierter Ozonabbau

Die Entwicklung des akkumulierten Ozonabbaus im arktischen Winter 2002/2003 ist in Abbildung 6.9 dargestellt. Diese Abbildung des akkumulierten Ozonabbaus in Abhängigkeit von der Höhe und von der Zeit basiert auf den in den Abbildung 6.8 dargestellten Ozonabbauraten in ppbv / Tag. Zusätzlich wurden die Informationen der hier nicht gezeigten Höhenniveaus

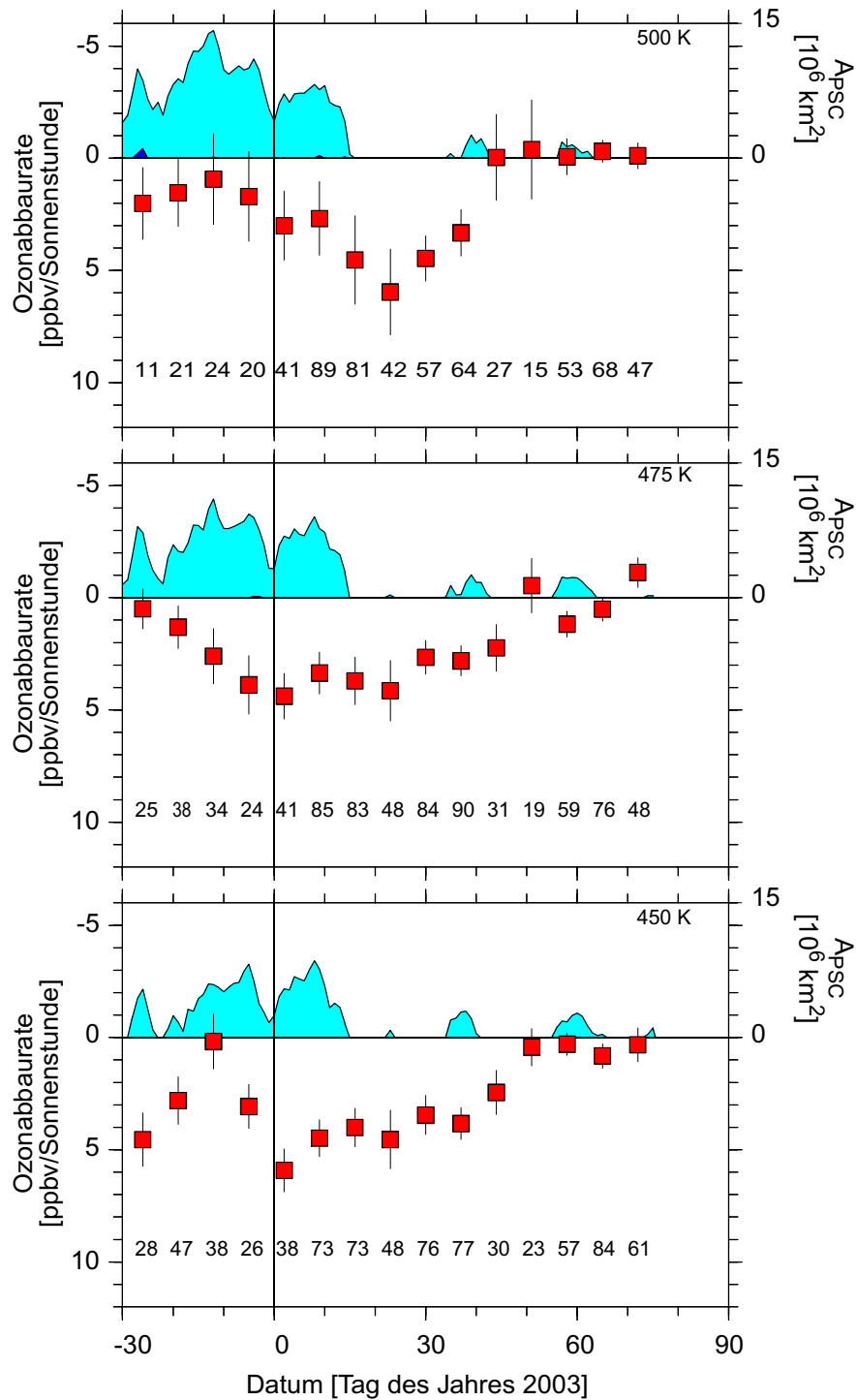


Abbildung 6.7: Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde für die Höhenniveaus $\Theta = 500, 475$ und 450 K . Im unteren Teil des Bildes sind die Ozonabbauraten als rote Quadrate mit dem statistischen 1σ Fehler aufgetragen. Die Zahlen unter den Abbauraten geben die Anzahl der Matche an, die in die Regression eingehen. In den oberen Teilen jedes Teilbildes ist in hellblau die Fläche aufgetragen, in der $T < T_{NAT}$ war, bzw. in dunkelblau die Fläche, in der $T < T_{Eis}$ war. Datenquelle: operationelle EZMW.

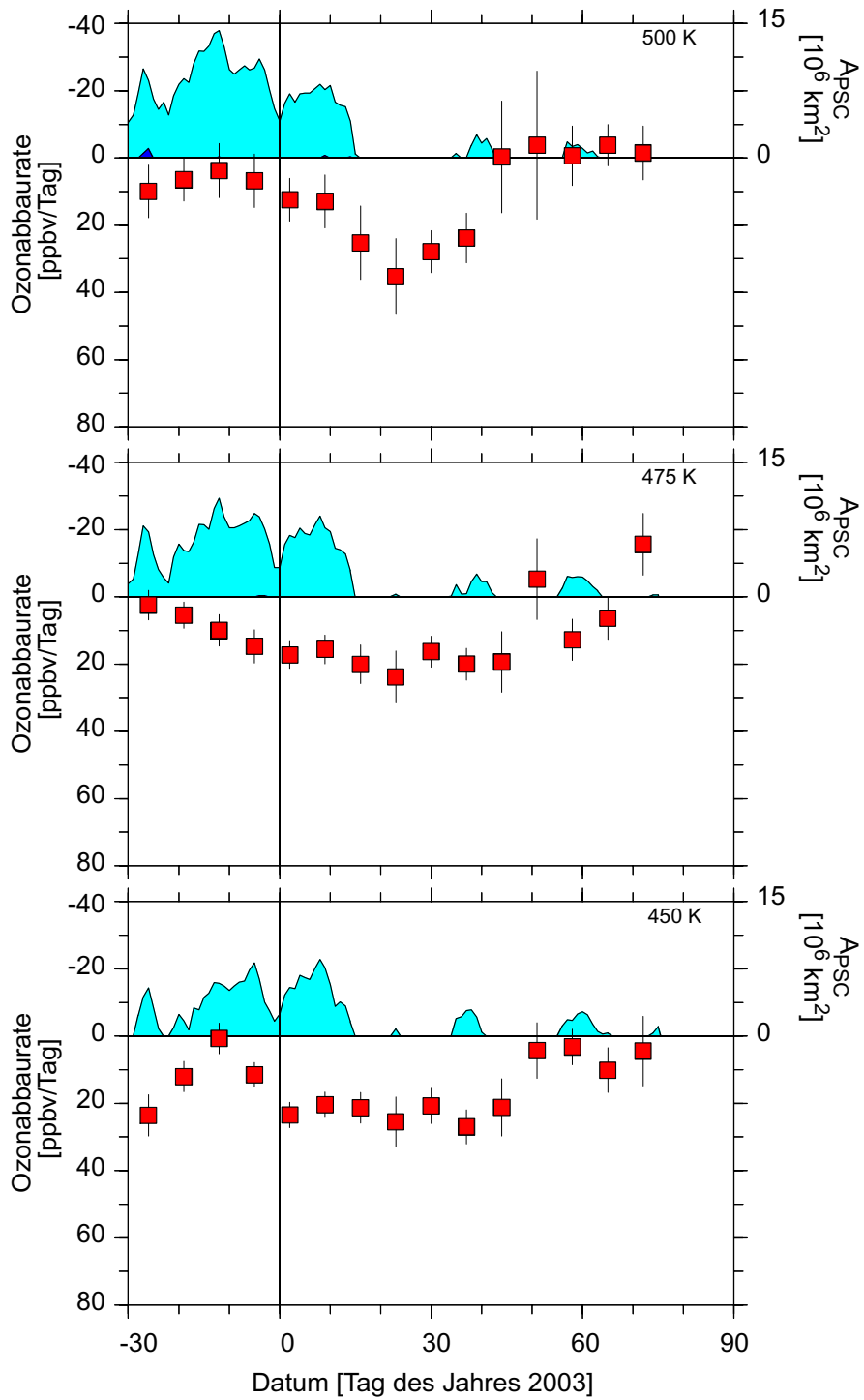


Abbildung 6.8: Wie Abbildung 6.7 für Ozonabbauraten in ppbv / Tag .

$\Theta = 400, 425, 525$ und 550 K genutzt. So ergibt sich einen Höhen-Zeitschnitt der aus Ozonabbauraten in ppbv / Tag zusammengesetzt ist und der Werte im zeitlichen Abstand von sieben Tagen und im Höhenabstand von 25 K beinhaltet.

Im Laufe eines Winters sinken die Luftmassen des Wirbels gegenüber den Isentropen ab. Dieses Absinken muss bei der Berechnung des akkumulierten Ozonabbaus berücksichtigt werden. In bisherigen Matchstudien wurden dazu die Luftmassen betrachtet, die am 31.03 die potentiellen Temperaturen von $\Theta = 400, 425, 450, 475, 500$ und 525 K erreicht haben. Diese potentiellen Temperaturniveaus werden im Anschluss als äquivalente potentielle Temperaturen bezeichnet und beziehen sich auf die Höhe der Luftpakete am 31. März 2003. Um eine Vergleichbarkeit zu gewährleisten, wird auch in dieser Arbeit der Ozonabbau in den genannten Luftschichten berechnet. Das mittlere Absinken der Luftmassen im Wirbel ist in Abbildung 6.9 für die verschiedenen Höhen mit gepunkteten Linien eingezeichnet. Innerhalb des Höhen-Zeitgitters kann nun für jeden Tag eine Ozonabbaurate für eine beliebige Höhe interpoliert werden. Abbildung 6.9 (b) zeigt den aufintegrierten Ozonabbau am 16. März 2003 (Tag 75) in den Höhen $\Theta = 407, 430, 454, 477$ und 501 K. Der akkumulierte Abbau in der absinkende Luftmasse, die im Frühjahr die Höhe von $\Theta = 500$ K erreicht hat, ist geringer als in den unteren Niveaus, was darauf hindeutet, dass die Oberkante des Ozonabbaus nah ist. Die Niveaus zwischen $\Theta = 407$ und 501 K zeigen integrierte Werte von $1,2-1,6$ ppmv. An der Luftmasse mit der äquivalenten Temperatur von 380 K ist erkennbar, dass in dieser Luftmasse Ozonzerstörung stattgefunden hat, die aber nicht integral quantifiziert wurde. Unterhalb von 400 K sind die im Abschnitt 4.2.2 angegebenen Qualitätsparameter nicht ausreichend erfüllt (Rex et al., 2002), so dass auf eine Auswertung dieser unteren Stratosphärenschichten verzichtet wurde. Der erscheinenden Doppelstruktur im vertikalen Profil des integrierten Ozonabbaus erscheint aufgrund der Farbgebung des Graphen Abbildung 6.9 (a) überbetont. Der integrierte Ozonabbau auf $\Theta = 475$ K äquivalenter Temperatur ist mit einem größeren statistischen Fehler behaftet. Das Vertikalprofile in Abbildung 6.9 (b) zeigt, dass der Ozonabbau zwischen der äquivalenten potentiellen Temperatur von $\Theta = 400-475$ K ungefähr gleich groß ist, bzw. leicht nach oben hin abnimmt.

In Abbildung 6.9 (c) ist der vertikal integrierte Ozonabbau in Dobson Units dargestellt. Dazu wird der bereits zeitlich integrierte Ozonabbau für die äquivalenten Temperaturen von $\Theta = 400 - 500$ K abgesunkenen Luftmassen an jedem der angegebenen Tage unter Verwendung von Gleichung (3.3) vertikal integriert. Die potentielle Temperatur wird dabei in die geometrische Höhe umgerechnet und die benötigten meteorologischen Parameter ergeben sich aus allen Ozonsonden, die im jeweiligen 14-Tages-Intervall innerhalb des Polarwirbels gestartet worden sind. So erhält man den, in Rex et al. (2002) als $[O3^*-O3]$ bezeichneten, Anteil der Ozonsäule, der vorhanden gewesen wäre, hätte kein Ozonabbau stattgefunden. Die Addition der gemittelten Säulendichte und der Größe $[O3^*-O3]$ ergibt die Säulendichte, die ohne Ozonabbau vorhanden gewesen wäre. Im Dezember 2002 ergibt sich ein akkumulierter Ozonverlust von 5 ± 1 DU in der Säule zwischen $\Theta = 453$ und 550 K. Der Ozonverlust am Tag 75 zwischen $\Theta = 407$ und 501 K (ca. $16-21$ km) beläuft sich auf einen Wert von 56 ± 4 DU.

Die so ermittelte Größe kann direkt mit den Ergebnissen der Passiven Subtraktionstechnik bzw. Simulationen aus 3D-CTMs verglichen werden, wie sie in Abschnitt 4.1.3 beschrieben worden sind.

Der hier angegebene Ozonabbau stellt eine untere Grenze für den gesamten Ozonabbau dar, der in der Säule stattgefunden hat. Wie in Abbildung 6.9 (b) ersichtlich, ist im Bereich oberhalb von 500 K äquivalenter potentieller Temperatur im Frühjahr kein weiterer großer Ozonabbau zu erwarten. Im Bereich unterhalb von 400 K ist allerdings noch weiterer Ozonabbau zu erkennen.

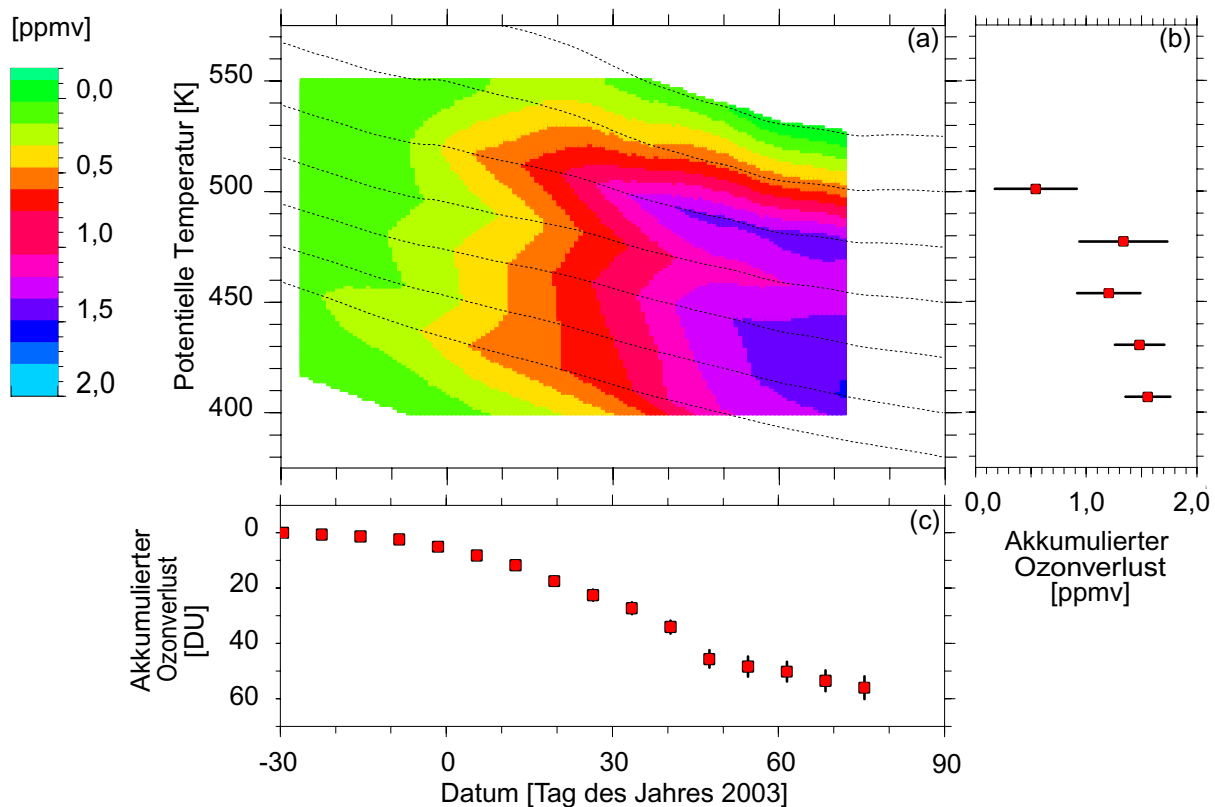


Abbildung 6.9: Teilabbildung (a): Zeitliche Entwicklung des akkumulierten Ozonabbaus in den absinkenden Luftpaketen mit den äquivalenten potentiellen Temperaturen $\Theta = 400, 425, 450, 475$ und 500 K. Der integrierte Ozonabbau ist farbig kodiert. Die gepunkteten Linien geben das mittlere diabatische Absinken der Luftpakete im Wirbel wieder. Teilabbildung (b): Profil des akkumulierten Ozonverlusts am 16. März (Tag 75). Teilabbildung (c): Ozonverlust in DU der durch vertikale Integration des akkumulierten Ozonverlustes an den jeweiligen Tagen aus den Daten der Teilabbildung (a) erhalten wurde.

Christensen et al. (2004) errechneten mit der Wirbelmitteltechnik aus Ozonsonden, dass im Winter 2002/2003 ca. 15 DU zusätzlicher Ozonabbau zwischen $\Theta = 350$ - 400 K äquivalenter potentieller Temperatur, stattgefunden hat.

6.2.4 Test auf Ozonabbau in Dunkelheit

Um die bei der Regression getroffene Annahme zu überprüfen, dass Ozonabbau nur während der sonnenbeschienenen Zeit stattfindet, wurde eine bivariate Regression durchgeführt. Da dies zum Zeitpunkt der größten Abbauraten passieren sollte, also im Januar, wird zusätzlich geprüft, ob die in diesem Zeitraum stattgefunden große Erwärmung einen Einfluss auf die Bestimmung der Ozonabbauraten hatte. Für die Periode 05.-31. Januar 2003 wurde eine bivariate Regression durchgeführt, die die Ozonänderung während der sonnenbeschienenen Zeit und in der Dunkelheit entlang der Trajektorien optimiert (Rex et al., 1999):

$$d = r_S t_S + r_D t_D$$

Bei r_S handelt es sich um die Abbauraten während der sonnenbeschienenen Zeit, und r_D ist die Abbauraten während der Dunkelheit. t_S und t_D sind die Zeiten, die die Trajektorie in der Sonne bzw. in der Dunkelheit verbracht hat. Im Januar auf $\Theta = 475 \pm 10$ K ergibt sich $L_S = 5,8 \pm 2,2$ ppbv / Sonnenstunde und $L_D = -0,6 \pm 0,6$ ppbv / dunkler Stunde. Der Fehler der multivariaten

Regression wurde nach der in Kapitel 8.1 vorgestellten Fehlerrechnung durchgeführt. Da somit das Ozon innerhalb der Dunkelzeiten entlang der Trajektorie erhalten blieb, ist die Methode selbst in der dynamisch aktiven Zeit nicht gestört worden.

6.2.5 Einfluss der Gitterpunktauflösung der meteorologischen Daten auf die Ozonabbauraten

Die Ozonabbauraten in dieser Arbeit beruhen auf Trajektorien, die mit meteorologischen Daten berechnet wurden, die auf einem $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ Gitter vorliegen. Bisher wurden zur Berechnung der Trajektorien EZMW Daten auf einem $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ Gitter gerechnet. Die Daten des EZMW-Modells werden im spektralen Raum berechnet und liegen mit einer Auflösung von 106 Wellenzahlen (Truncation: T106) oder interpoliert auf ein Gaußsches Gitter von $1,125^\circ \times 1,125^\circ$ vor. Seit 2003 hat Dr. Reimer (FUB) die EZMW-Daten in einer feineren Gitterpunktauflösung von $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ für diese Arbeit verfügbar gemacht. In Abbildung 6.10 ist der Effekt der unterschiedlichen Gitterpunktauflösungen der meteorologischen Daten auf die Ozonabbauraten dargestellt. Dazu wurde eine zweite Auswertung mit Trajektorien vorgenommen, die auf EZMW Daten mit einer Gitterpunktauflösung von $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ beruhen. Dargestellt sind die drei Höhenniveaus $\Theta = 450, 475$ und 500 K. Auf dem $\Theta = 475$ K Niveau ist die Übereinstimmung zwischen der Analyse mit hochaufgelösten (rote Quadrate) und niedrigaufgelösten (grüne Kreuze) meteorologischen Daten gut. Die Punkte liegen innerhalb der statistischen 1σ Fehler der Auswertung die mit hochaufgelösten EZMW Daten durchgeführt wurde. Die Niveaus ober- und unterhalb von $\Theta = 475$ K reagieren sensibler auf die Änderung der horizontalen Auflösung. Auf dem $\Theta = 500$ K Niveau ist die generelle Übereinstimmung etwas schlechter, allerdings liegen die Abbauraten der niedrig aufgelösten Trajektorien innerhalb der statistischen 1σ Fehler der hochaufgelösten Trajektorien. Auf dem $\Theta = 450$ K Niveau ergibt sich ein deutlicher Unterschied im Dezember. Hier werden die großen Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde am Anfang des Monats in der Auswertung mit niedrig aufgelösten Trajektorien nicht bestätigt. Die Unterschiede im Dezember auf dem $\Theta = 450$ K Niveau deuten an, dass die Ozonabbauraten im Dezember weniger robust sind als die Abbauraten von Januar bis März. Dies kann einerseits ein Effekt der geringeren Anzahl der enthaltenen Matche sein. Andererseits kann aufgrund der geringen Sonneneinstrahlung im Dezember das Nicht-Zustandekommen einiger Matche eine große Auswirkung auf die berechneten Ozonabbauraten haben. Im weiteren Verlauf des Winters ergibt sich aber auch auf diesem Niveau eine gute Übereinstimmung beider Analysen. Am Tag 51 ist die Ozonabbaurate der niedrig aufgelösten Analyse durch ein weißes Kreuz anstatt eines grünen Kreuzes angegeben. Dieser Punkt beinhaltet weniger als zehn Matche und ist daher wenig aussagekräftig.

Insgesamt ergibt sich eine zufriedenstellende Übereinstimmung der Auswertung, deren Trajektorien auf der geringeren Gitterpunktauflösung beruhen mit der Auswertung, deren Trajektorien auf der höheren Gitterpunktauflösung beruhen auf den verschiedenen Höhenniveaus. Aus den hier betrachteten Daten ergibt sich kein systematischer Effekt, so dass die Kontinuität der Zeitreihe nicht gefährdet ist.

6.2.6 Sensitivität der Ozonabbauraten auf die diabatischen Heizraten

In diesem Test wurde die Sensitivität der Abbauraten auf systematische Fehler in den diabatischen Heizraten getestet, die von der Strahlungstransportroutine MIDRAD des 3-D CTMs SLIMCAT berechnet wurden. Die Strahlungstransportroutine MIDRAD nutzt zur Berechnung

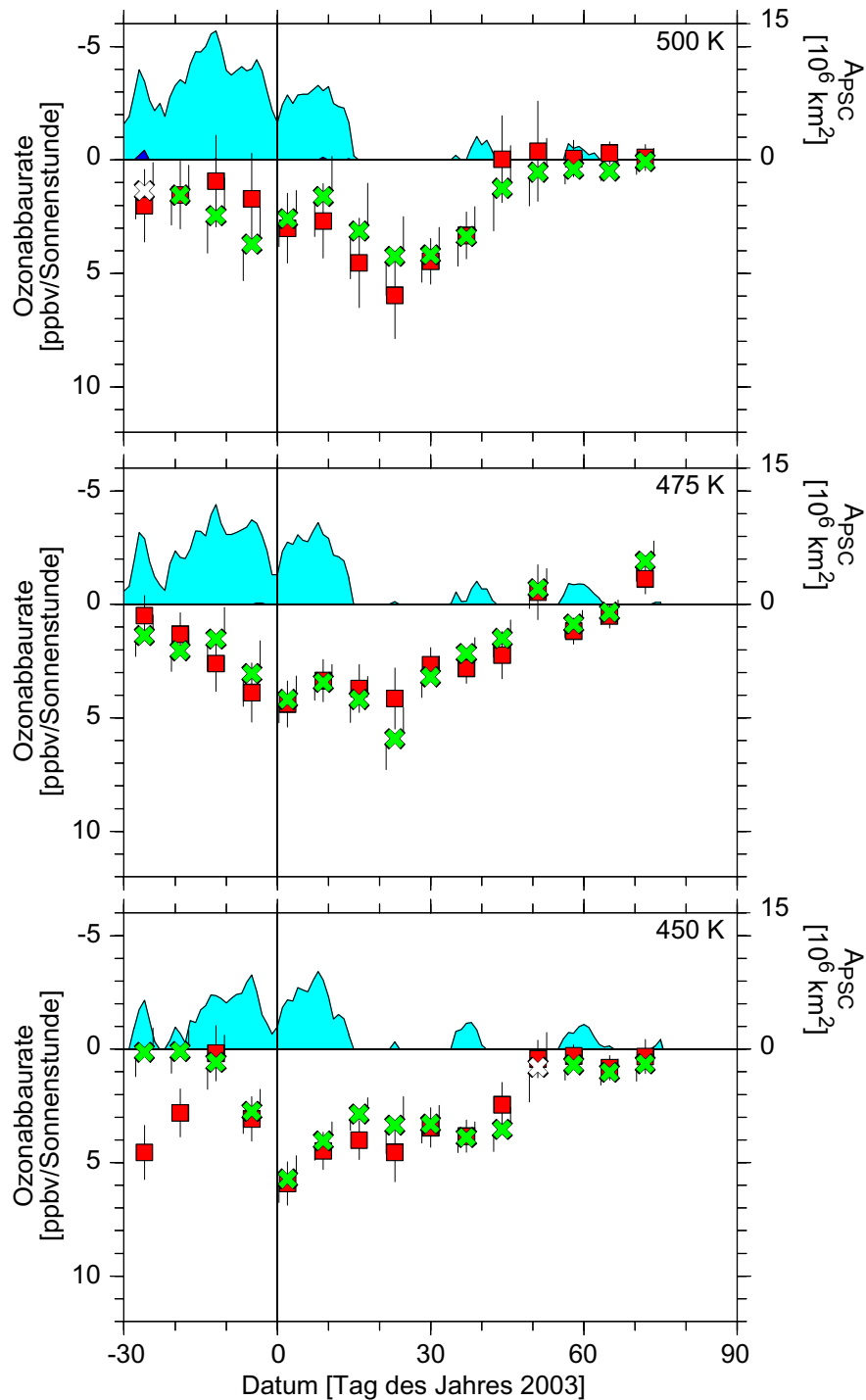


Abbildung 6.10: Vergleich der Ozonabbauraten auf den Höhen $\Theta = 500, 475$ und 400 . Für die Trajektorienrechnungen wurden verschieden aufgelöste meteorologischen Daten des EZMW verwendet. Die Ozonabbauraten, denen meteorologische Daten mit einer horizontalen Gitterauflösung von $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ Auflösung zugrunde liegen sind in roten Quadraten dargestellt. Grüne Kreuze zeigen die Ergebnisse für die $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ Auflösung an. Die Fehlerbalken geben die statistische 1σ Unsicherheit an. Weiße Kreuze zeigen Abbauraten, in deren Regression weniger als 10 Matche eingegangen sind.

der Heizraten eine klimatologische Ozonverteilung, so dass die Heizraten vom gemittelten vertikalen Gradienten des Ozonmischungsverhältnisses abhängig sind, welches eine jährliche und jahreszeitliche Variabilität aufweist. Fehler in den Heizraten können sich auf zwei verschiedene Arten auswirken. Einerseits werden die Trajektorien aufgrund falscher Vertikalgeschwindigkeiten nicht richtig berechnet. Andererseits wird im Ozonprofil der zweiten Sonde der Ozonwert auf der falschen isentropen Fläche gesucht. In diesem Test wird ausschließlich der zweite Effekt berücksichtigt und es wird ermittelt in welchem Bereich die Abbauraten in Abhängigkeit der Heizraten schwanken.

Für die viele der bisherigen Winter war die Sensitivität der Ozonabbauraten von den eingesetzten Heizraten klein. Allerdings wurde gezeigt, dass für den Winter 1991/1992 systematische Effekte der Heizraten große Auswirkung auf die Matchanalyse hatte (Rex, 1997a). Der stark dynamisch beeinflusste Winter 2002/2003 lässt vermuten, dass es im Vergleich zu früheren Wintern auch eine stärkere Variabilität der Heizraten gab. In Abbildung 6.11 ist die Abhängigkeit der berechneten Ozonabbauraten von den Heizraten auf den drei Höhenniveaus $\Theta = 450, 475, 500$ K gezeigt. Dafür wurden die Heizraten einmal halbiert (grüne Kreuze) und einmal mit einem konstanten Faktor von 1,5 multipliziert (blaue Sterne). Die Abbauraten der Standardauswertung der jeweiligen Höhe sind als rote Kästchen gezeigt.

Generell ergibt sich für alle drei Höhen eine gute Übereinstimmung der Ozonabbauraten für die Monate Januar bis März, während die größten Abweichungen von der Standardauswertung im Dezember zu finden sind. Die Reduzierung der Heizraten führt dabei zur Abnahme der Ozonabbauraten und die Vergrößerung der Heizraten zu einer Zunahme der Ozonabbauraten. Die gefundenen Abweichungen liegen allerdings noch im Bereich des statistischen 1σ Fehlers. Auf dem $\Theta = 500$ K Niveau ergibt sich eine größere Abweichung um den Tag 51, der vor allem durch die kleine Erwärmung beeinflusst wurde. Allerdings liegt auch hier die Abweichung im Bereich des statistischen 1σ Fehlerbalkens der Standardauswertung. Wie schon im Test zur horizontalen Auflösung der meteorologischen Daten hat auch die systematische Variation der Heizraten den größten Effekt auf die Ozonabbauraten im Dezember. Hier würde eine systematische Unter- bzw. Überschätzung zu einer systematischen Unter- bzw. Überschätzung der Abbauraten führen, was bei der Interpretation der Ozonabbauraten berücksichtigt werden muss. Allerdings wurde in diesem Test nur die Abhängigkeit von den Heizraten des Modells MIDRAD getestet. Zur genauen Abschätzung des Effektes der Heizraten auf die berechneten Ozonabbauraten müssten Heizraten eines anderen Modells zum Vergleich hinzugezogen werden. Generell ist zu sagen, dass Heizraten eine bessere Annahme zur Berechnung von Trajektorien sind, als die Nutzung von Vertikalwinden aus den Assimilationssystemen, wie z.B. vom EZMW.

6.2.7 Rückwärtsmatchradius

Terao et al. (2002) verwendeten die Matchtechnik um Ozonprofile des Satellitenexperimentes ILAS aus dem arktischen Winter 1996/1997 zu analysieren. Da das von einem Satelliten beprobte Luftpaket größer ist als das einer Sonde, wurde ein weiterer Qualitätsparameter eingeführt. Es wurden Rückwärtstrajektorien vom Ort der zweiten Messung bis zum Zeitpunkt der ersten Sondierung berechnet und die Entfernung zwischen dem Endpunkt der Rückwärtstrajektorie und der ersten Sondierung ermittelt. Dieser zweite Matchradius wird im Folgenden Rückwärtsmatchradius genannt, um ihm vom Vorwärtsmatchradius zu unterscheiden. Der Einfluss dieses Qualitätsparameters auf den Sondenmatchansatz im Winter 2002/2003 wurde getestet.

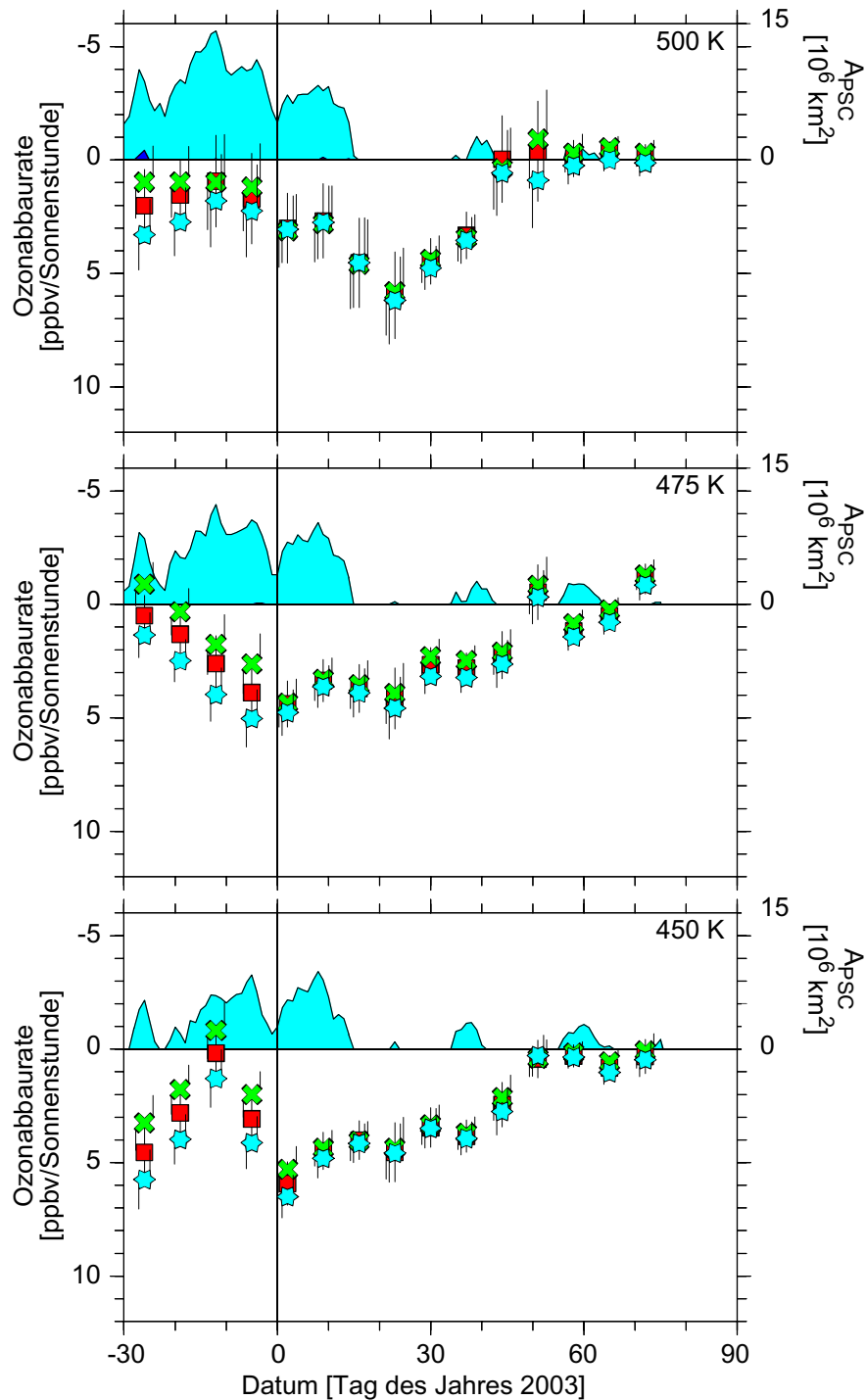


Abbildung 6.11: Sensitivität der Ozonabbaurate in ppbv / Sonnenstunde auf die Heizraten, die zur Berechnung der Trajektorien genutzt wurden auf den Höhen $\Theta = 500, 475$ und 400 K. Die roten Quadrate geben die Ergebnisse der Standardauswertung wieder. Die grünen Kreuze zeigen die Ozonabbauraten bei Multiplikation der Heizraten mit 0,5. Die hellblauen Sterne zeigen die Abbauraten bei Multiplikation der Heizraten mit 1,5. Die Fehlerbalken geben die statistische 1σ Unsicherheit an.

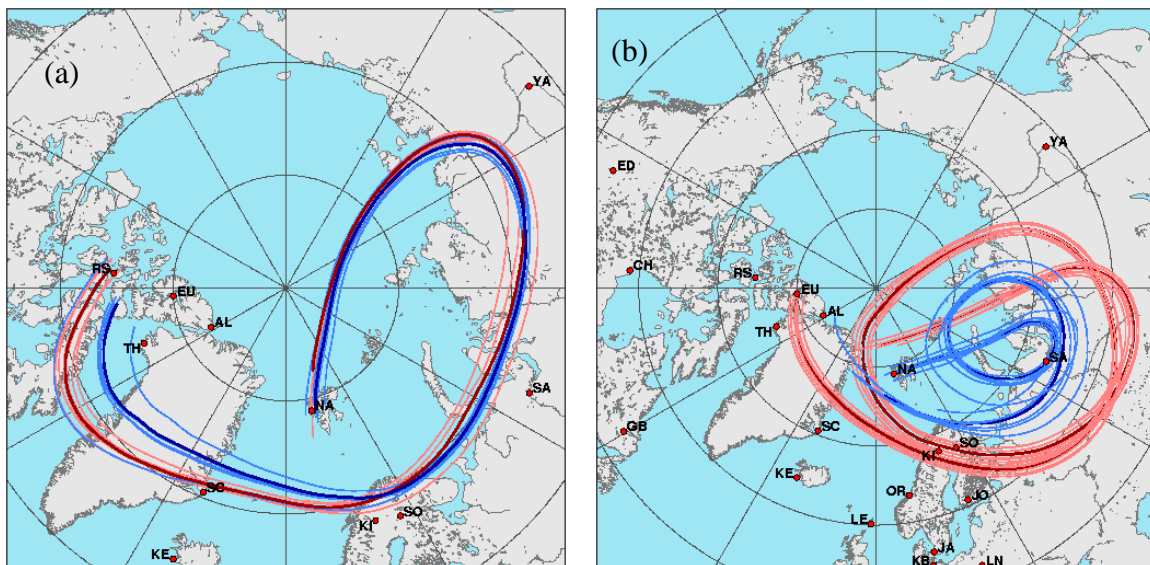


Abbildung 6.12: Beispiele für den Verlauf von Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien-Cluster. Der Vorwärtstrajektorien-Cluster ist in rot und der Rückwärtstrajektorien-Cluster ist in blau gehalten. Die zentralen Trajektorien sind in der jeweiligen Farbe, allerdings etwas dunkler, dargestellt. In Abbildung (a) liegt die Rückwärtstrajektorie zum Zeitpunkt der ersten Sondierung innerhalb eines Radius von 500 km und in Abbildung B liegt der Rückwärtstrajektorienradius bei 1900 km.

So wurde ein Rückwärtstrajektorien-Cluster von sieben Trajektorien am Ort der zweiten Sondierung aufgesetzt. Dies geschah analog zum Vorwärtstrajektorien-Cluster (siehe Abschnitt 4.2.1). Durch das diabatische Absinken erreicht eine Trajektorie zum Zeitpunkt der zweiten Sondenmessung eine beliebige Höhe. Um Rechenzeit zu sparen, wurden die Rückwärtstrajektorien auf den gleichen Höhengniveaus gestartet wie die Vorwärtstrajektorien. Es kann dadurch zu einem Höhenunterschied von maximal 2,5 K zwischen dem Sondierungspunkt der Sonde und dem Startpunkt der Rückwärtstrajektorie kommen.

In Abbildung 6.12 sind zwei Beispiele gezeigt. Beide besitzen einen Vorwärtstrajektorienradius von ca. 400 km. In Abbildung 6.12 (a) startet der Vorwärtstrajektorien-Cluster über der Station Resolute am 02. Januar 2003 mit der zentralen Trajektorie auf $\Theta = 485$ K und wird durch eine Sonde über Ny-Ålesund am 09. Januar 2003 nach 180 Stunden Flugzeit ein weiteres Mal beprobt. Dabei sinkt das Luftpaket auf $\Theta = 479,1$ K ab. Die zentrale Trajektorie des Rückwärtstrajektorien-Clusters startet am Ort der Sondenmessung auf dem $\Theta = 480$ K Niveau. Der Rückwärtstrajektorienradius beträgt ~ 345 km und endet auf $\Theta = 485,9$ K.

Im zweiten Beispiel startet die Trajektorie von Eureka am 28. Februar 2003 auf dem $\Theta = 485$ K Niveau und wird am 09. März 2003 über Ny-Ålesund ein weiteres Mal auf dem $\Theta = 483,8$ K Niveau nach 220 Stunden beprobt. Die zentrale Trajektorie des Rückwärtstrajektorien-Clusters startet von $\Theta = 485$ K aus. Der Rückwärtstrajektorienradius beträgt ~ 1900 km. Das Qualitätskriterium für den Vorwärtstrajektorienradius ist noch kein Garant dafür, dass eine berechnete Rückwärtstrajektorie, die vom Punkt der zweiten Messung startet, ebenfalls der ersten Sondierung nahe kommt.

Es werden nun dieselben Qualitätskriterien, die auf den Vorwärtstrajektorien-Cluster angewendet worden sind, auch auf den Rückwärtstrajektorien-Cluster angewendet. Dies sind im Einzelnen die Abfrage der Divergenz der Schwarmtrajektorien und die Änderung der PV entlang der Trajektorie. Wird die zentrale Rückwärtstrajektorie aufgrund ihrer mittleren PV dem Wirbel-

randbereich zugeordnet, wird kein Matchradius, sondern eine Ellipse berechnet, in dem die erste Sondierung liegen muss, siehe Abschnitt 4.2.2. Die Achsen der Ellipse werden nicht variiert. Der Rückwärtsmatchradius wird auf zwei verschiedene Arten getestet.

Im ersten Fall wird der Rückwärtsmatchradius genau wie der Vorwärtsmatchradius behandelt. Es wird ein fester Schwellenwert von 600, 500 oder 400 km eingeführt, bei einem konstanten Vorwärtsmatchradius von 500 km. In Abbildung 6.13 ist das für die drei Höhen $\Theta = 450, 475, 500$ K gezeigt. Die grünen Kreuze geben die Ozonabbauraten an, die mit einem Schwellenwert von 600 km für den Rückwärtsmatchradius gefiltert wurden. Es bleiben auf den drei Höhen entsprechend 235, 252 und 203 Matche übrig. Die blauen Sterne kennzeichnen die Version, in der der Schwellenwert auf 500 km gesenkt wurde und 208, 233 und 182 Matche bleiben erhalten. Die blauen Rhomben zeigen die Version, in der der Schwellenwert auf 400 km reduziert wurde, wobei 174, 191 und 152 Matche auf dem jeweiligen Höhenniveau den Qualitätsmerkmalen entsprechen. Die Standardauswertung ist in roten Quadraten gezeigt und beinhaltet 401, 405 und 341 Matche.

Für die Höhen $\Theta = 450$ und 475 K bleiben die Abbauraten für die verschiedenen Schwellenwerte den maximal erlaubten Rückwärtsmatchradius dicht an der Standardauswertung, bzw. innerhalb des 1σ Fehlerbalkens für Januar bis März. Dabei ist kein systematischer Effekt zu erkennen. Wie an den weiß ausgefüllten Symbolen und der angegebenen Anzahl der eingehenden Matche sichtbar wird, werden aufgrund der zusätzlichen Qualitätsparameter so viele Matche aussortiert, dass die Regression in einigen Fällen nicht mehr aussagekräftig ist. Die Anzahl ist dann auf unter 10 gesunken. Auf dem Niveau $\Theta = 500$ K ist eine deutliche Abweichung von der Standardauswertung zu sehen. Da die Anzahl der eingehenden Matche kleiner als bei den unteren Höhenniveaus ist, wirkt sich die Einführung des 600 km Schwellenwertes für den Rückwärtsmatchradius stark auf die Größe der Ozonabbauraten aus. Die Einführung des 400 km Rückwärtsmatchradius erscheint nicht sinnvoll da z.B. im Dezember auf allen Höhenniveaus weniger als 10 Matche in die Regression eingehen.

Im zweiten Test wurden die beiden Matchradien (Vorwärts- und Rückwärtsmatchradius) addiert und ergaben so einen kombinierten Matchradius. Dieser kombinierte Matchradius wurde nun für drei Schwellenwerte getestet. Abbildung 6.14 zeigt diesen Test anhand der drei Höhen $\Theta = 450, 475$ und 500 K. Dabei zeigen die roten Quadrate die Ozonabbauraten der Standardauswertung, die grünen Kreuze den Test mit kombiniertem Matchradius kleiner als 1000 km (247, 273, 215 Matche), die hellblauen Sterne den Test mit kombiniertem Matchradius von kleiner als 800 km (188, 227, 155 Matche) und die blauen Rhomben die Ozonabbauraten bei einem maximal zugelassenen kombinierten Matchradius von 700 km (154, 188, 133 Matche). Für die Höhen $\Theta = 450$ und 475 K ergibt sich für jeden der kombinierten Matchradien eine bessere Übereinstimmung mit dem Standardmatch-Ansatz als bei der direkten Abfrage des Schwellenwertes für den Rückwärtsmatchradius. Das $\Theta = 500$ K Niveau zeigt ähnliche große Abweichungen wie bei der Einführung der Einzelabfrage.

In Abbildung 6.15 (a), (c) und (e) ist die Verteilung der Rückwärtsmatchradien der Standardauswertung und in (b), (d) und (f) deren Integration gezeigt. Auf allen Höhen sind etwa 50% der Rückwärtsmatchradien kleiner als 500 km. 95% der Matchradien sind kleiner als 2000 km, die weiteren 5% können bis zu 7000 km groß werden.

Die Verteilung der Rückwärtsmatchradien unterstreicht, dass es sich bei Match um eine statistische Methode handelt. Obwohl teilweise sehr große Rückwärtsmatchradien auftreten, bleiben die errechneten Abbauraten auf dem $\Theta = 450$ und 475 K Niveau innerhalb der statistischen

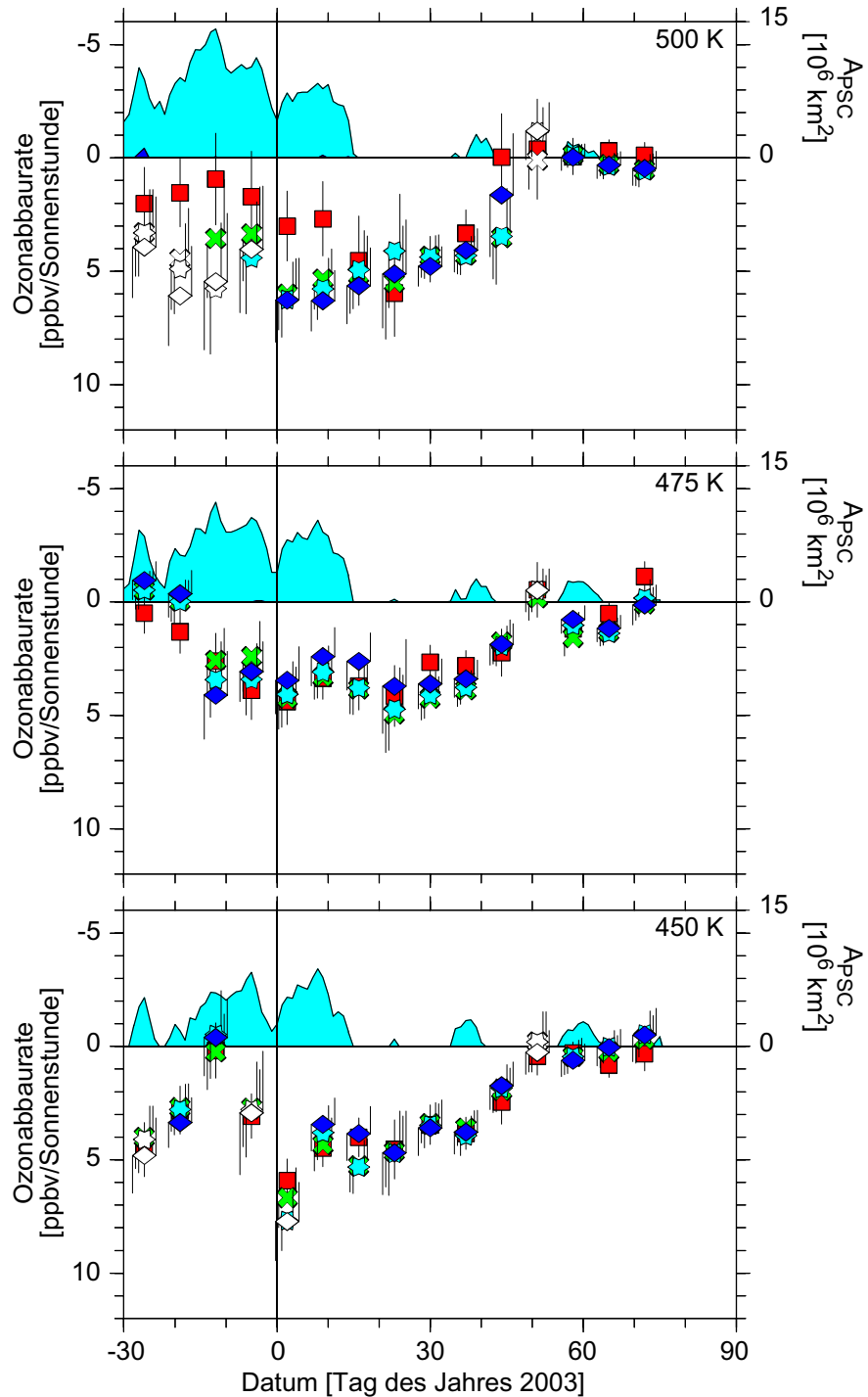


Abbildung 6.13: Sensitivität der Ozonabbauraten auf die Einführung eines zweiten Rückwärtsmatchradius auf den Höheniveaus $\Theta = 500, 475, 450$ K. Dabei wurde der maximale Vorwärtsmatchradius bei 500 km konstant gehalten und der maximale Rückwärtsmatchradius auf 600 km (grüne Kreuze), 500 km (hellblaue Sterne) und 400 km (dunkelblaue Rhomben) gesetzt. Die roten Quadrate geben die Standardauswertung wieder. Die Fehlerbalken geben die statistische 1σ Unsicherheit an. Ist ein Symbol weiß gezeichnet, sind weniger als zehn Matche in die Regression eingegangen.

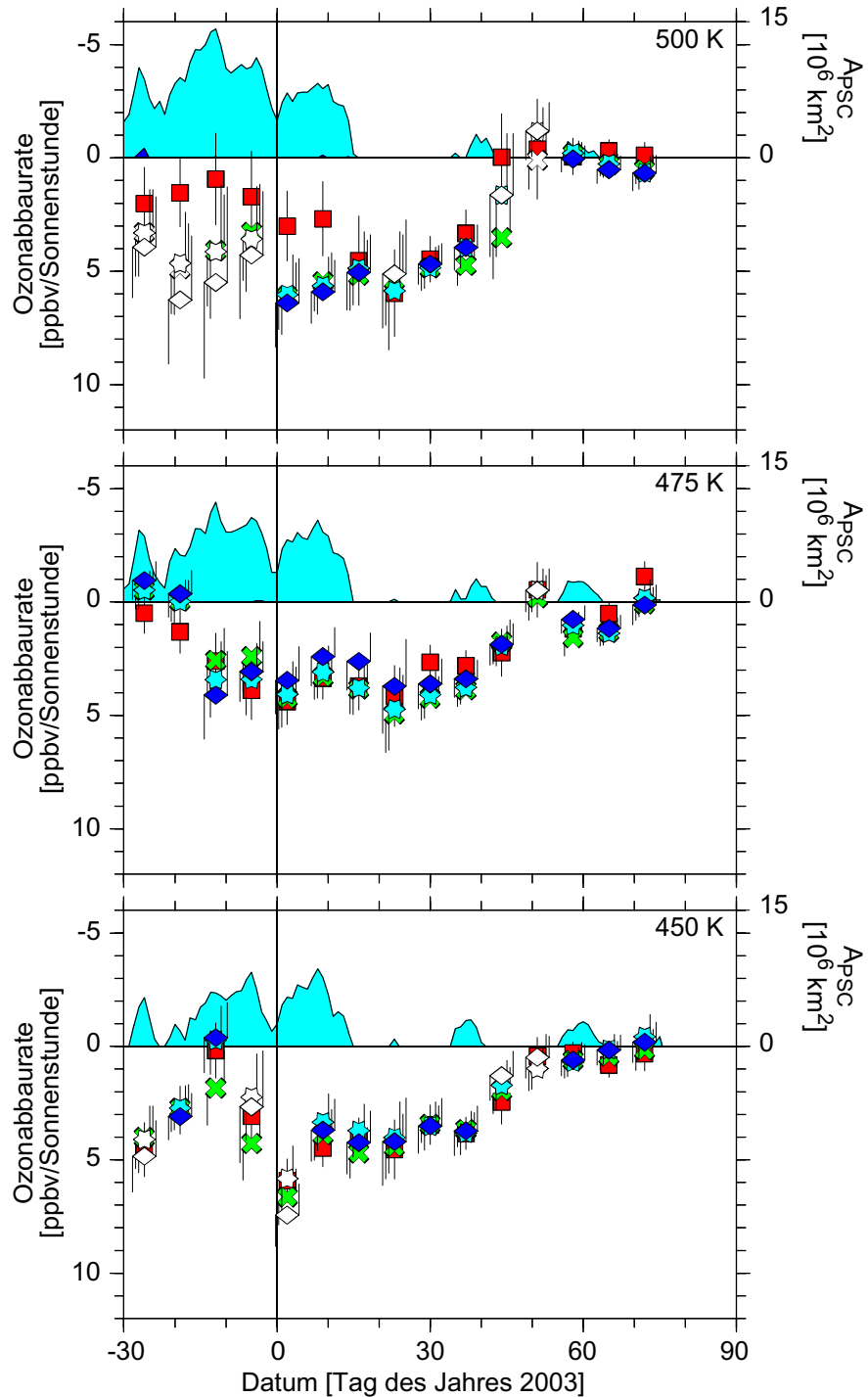


Abbildung 6.14: Abhängigkeit der Ozonabbauraten auf die Einführung eines zweiten Matchradius auf den Höheniveaus $\Theta = 500, 475, 450$ K. Dabei wurde der maximale Vorwärtsmatchradius und der maximale Rückwärtsmatchradius addiert und die Summe beider Radien mit 1000 km (grüne Kreuze), 800 km (hellblaue Sterne) und 700 km (dunkelblaue Rhomben) gesetzt. Die roten Quadrate geben die Standardauswertung wieder. Die Fehlerbalken geben die statistische 1σ Unsicherheit an. Ist ein Symbol weiß gezeichnet, sind weniger als zehn Matche in die Regression eingegangen.

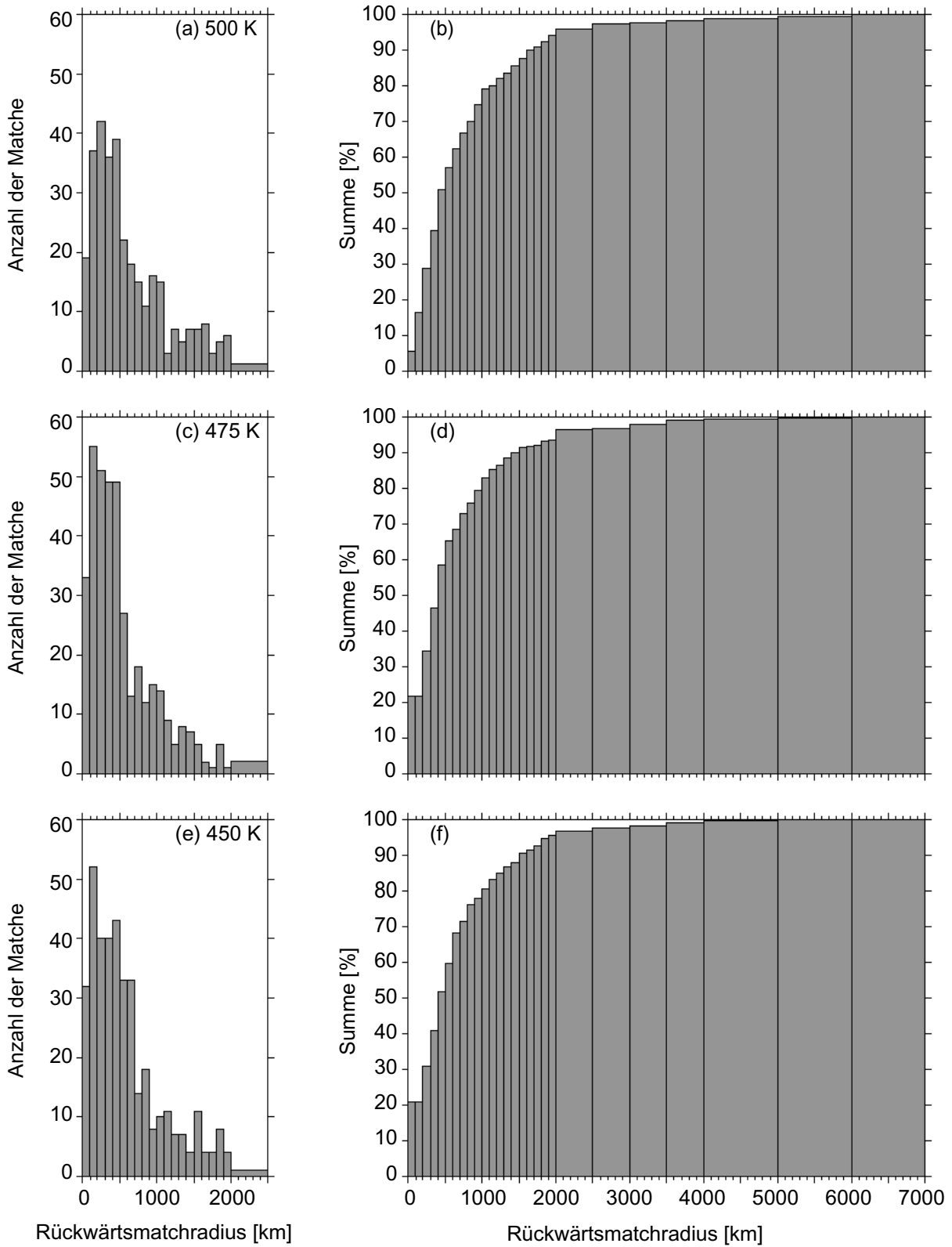


Abbildung 6.15: Die Graphen (a), (c) und (e) zeigen die Verteilung der Rückwärtsmatchradien für $\Theta = 500, 475$ und 450 K Niveau. Die Graphen (b), (d) und (f) zeigen die prozentuale Integration der Verteilung aus (a), (c) und (e).

1σ Unsicherheit stabil, wenn man Matche mit Rückwärtsmatchradien ausschließt, die oberhalb vernünftiger Schwellenwerte liegen. Die Abbauraten des $\Theta = 500$ K Niveaus reagieren sensibler auf die Einführung des Rückwärtsmatchradius. So zeigt die erste Winterhälfte deutliche Abweichungen zwischen der Standardauswertung und den Auswertungen mit den zusätzlichen Qualitätsparametern. Die Ozonabbauraten der Standardauswertung auf diesem Niveau besitzen bereits einen größeren statistischen Fehler und es gehen vergleichsweise weniger Matche in die Auswertung ein, als in die unteren Niveaus. Die Reduktion der eingehenden Matche führt so zu starken Schwankungen der Ozonabbauraten.

An dieser Stelle müsste auch die Güte der meteorologischen Daten und der Routine zur Berechnung der Trajektorien herangezogen werden, um zu überprüfen inwieweit die gefundenen Ergebnisse von ihnen abhängen. Eine Analyse dieser Werkzeuge würde eine zweite Doktorarbeit füllen.

6.3 Vergleich mit anderen Ergebnissen

Goutail et al. (2005) haben den Ozonabbau während des Winters 2002/2003 durch den Vergleich von Ozonmessungen des SAOZ Netzwerkes (Systeme d'Analyse par Observation Zenithale) mit der Berechnung von passivem Ozon im CTM REPROBUS ermittelt. Bei dem SAOZ Netzwerk werden UV-Spektrometer eingesetzt, die an Stationen in mittleren und hohen nördlichen Breiten stehen und die Verteilung von Spurengasen (z.B. Ozon) in der Atmosphäre mit Hilfe der wechselnden Sonnenzenithwinkel messen. Mit dieser Methode wurde eine Ozonreduktion der Säule von 6-8% bis Ende Dezember berechnet, was ca. 25-30 DU entspricht. Dieser Wert ist sehr hoch im Vergleich zu ~ 5 DU, die mit der Matchtechnik ermittelt wurde. Ein Grund ist die etwas unterschiedliche Definition des Wirbelrandes in beiden Ansätzen. Auch sind die SAOZ-Spektrometer auf Licht angewiesen, was dafür spricht, dass im Dezember vor allem der Wirbelrand beprobt wurde. Im Frühwinter ist der Ozonabbau in der Regel stärker am Wirbelrand als im Zentrum des Wirbels. Die durchgeführten Studien zeigen, dass neben der statistischen Unsicherheit die Ozonabbauraten mit größeren Unsicherheiten belastet sind, so dass der von Match berechnete Wert für Dezember eine größere Unsicherheit besitzt, als durch den statistischen Fehler angegeben wird. Allerdings ist es unwahrscheinlich, dass die Differenz von ~ 25 DU allein durch die obengenannten Unterschiede zu begründen ist. Für den Zeitraum Januar bis Ende März wird eine Reduktion von 12-14% der Gesamtsäule von Goutail et al. (2005) berechnet, was ca. 50 DU entspricht. Dies liegt in grober Übereinstimmung mit dem Ergebnis der Matchtechnik von ~ 51 DU. Allerdings ist das Matchergebnis ein unterer Grenzwert für den Abbau in der Gesamtsäule.

Singleton et al. (2004) nutzten das passive Ozon des SLIMCAT CTMs und Messungen des Satelliteninstrumentes POAM III, um den chemischen Ozonabbau mit einer passiven Subtraktionstechnik (Abschnitt 4.1.3) im Wirbel zu bestimmen. Mitte März wurde der maximale Ozonabbau von 1,2 ppmv für das Luftpaket errechnet, das Ende März $\Theta = 425$ K erreicht hat. Für dieses Niveau wurde mit der Matchtechnik ein Abbau von 1,6 ppmv für den gleichen Zeitpunkt berechnet. Für die meisten Höhen zwischen $\Theta = 400$ und 500 K berechneten Singleton et al. (2004) etwas geringeren Ozonabbau als die Match-Technik, allerdings stimmen die Ergebnisse im Rahmen der statistischen 1σ Fehler überein. Eine mögliche Quelle für den systematischen Unterschied zwischen Match und der passiven Subtraktionsmethode ist, dass die Initialisierung des Modells durch Ozonfelder von einem anderen Sensor erfolgt als zur Bestimmung des Ozonabbaus genutzt wird.

Kapitel 7

Antarktische Matchkampagne 2003

Im antarktischen Winter und Frühjahr 2003 wurde die erste antarktische Match-Kampagne durchgeführt. Bisher wurde diese Technik nur auf die Arktis angewendet. Während der antarktischen Match-Kampagne 2003 wurden ca. 420 Sonden von Mitte Juni bis Mitte Oktober von neun Stationen in der Antarktis in den Wirbel gestartet. Im Gegensatz zur Arktis sind dies erheblich weniger Stationen. Abgesehen von der Amundsen-Scott (SP) Station, die am geographischen Südpol liegt, liegen die weiteren Stationen an der Küste des antarktischen Kontinents. Auf der antarktischen Halbinsel liegen die Stationen Marambio (MR) und Rothera (RO), an der Küstenlinie des Kontinents liegen Davis (DA), Dumont d'Urville (DU), Neumayer (NM), Syowa (SY) und weiter südlich liegen die Stationen Belgrano 2 (BG) und McMurdo (MU).

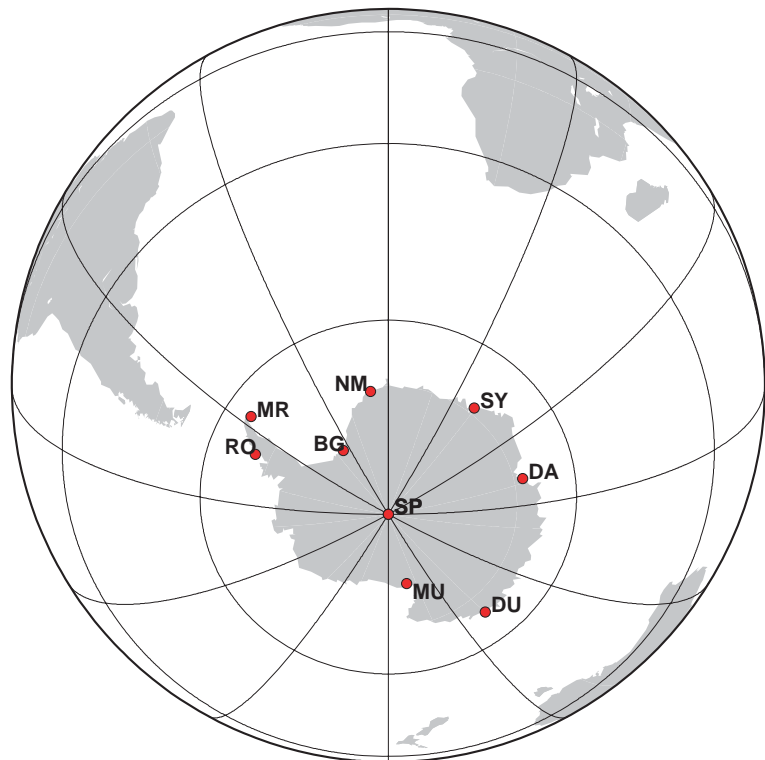


Abbildung 7.1: Stationsnetzwerk der antarktischen Matchkampagne 2003.

7.1 Meteorologie des antarktischen Winters 2003

Der dynamische Aspekt des antarktischen Winters 2003 soll anhand Abbildung 7.2 erläutert werden. Im oberen Teil der Abbildung 7.2 ist der zeitlich und zonal gemittelte zonale Wind bei 60° S aufgetragen. Diese Mittelwerte wurden aus den operationellen meteorologischen Daten des EZMWs berechnet. Die rote Einfärbung des Windfeldes zeigt Ostwinde an. Von Juli an erkennt man ein nach Westen gerichtetes Starkwindband bei 60° S mit maximalen Windgeschwindigkeiten um 80 m/s oberhalb von 10 hPa. Dieses Starkwindband bleibt bis Mitte Oktober erhalten, wenn sich erste Ostwinde zwischen dem 1 und 3 hPa Niveau einstellen und sich langsam nach unten durchsetzen. Bis Ende November haben die Ostwinde das 10 hPa Niveau erreicht, die Umstellung zur Sommerzirkulation hat statt gefunden.

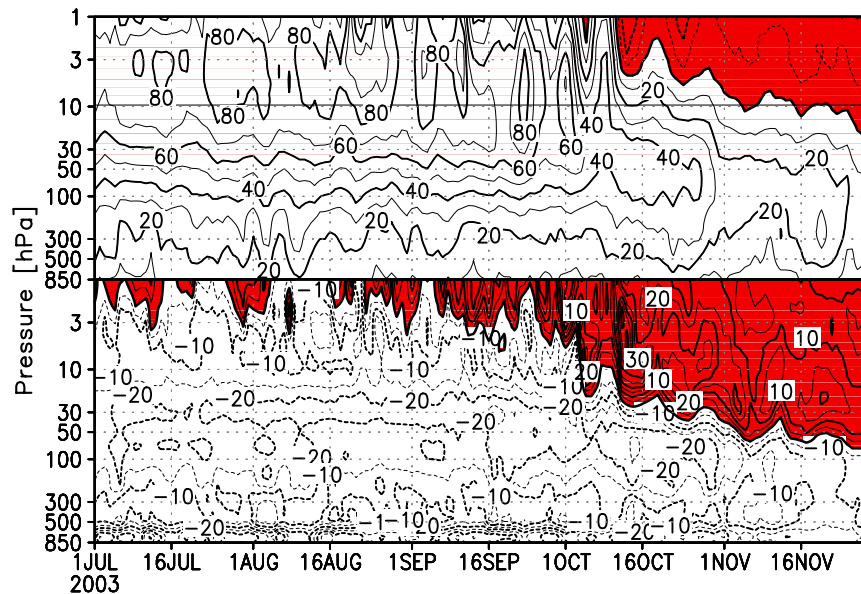


Abbildung 7.2: Die obere Teilabbildung zeigt den Höhen-Zeitschnitt des zonalen gemittelten zonalen Windes bei 60° S und die untere den Temperaturgradienten zwischen 60° S und dem Südpol. Ostwinde und niedrigere Temperaturen auf 60° S als am Südpol sind rot eingefärbt. Die 10 hPa Fläche ist als gestrichelte Linie eingezeichnet. (persönlichen Mitteilung Krüger, 2004). Datenquelle: operationelle EZMW Daten.

Im unteren Teil der Abbildung 7.2 ist der täglich gemittelte Temperaturgradient zwischen 60° S und dem Südpol aufgetragen. Rot eingefärbt sind Bereiche, in denen die gemittelte Temperatur in 60° S niedriger ist als am Pol. In der oberen Stratosphäre findet den ganzen Winter über eine zeitweilige Umkehr des Temperaturgradienten statt, die sich aber nicht bis in die mittlere Stratosphäre durchsetzen kann. Mitte Oktober hat sich der Temperaturgradient dann bis zum 30 hPa Niveau umgedreht und erreicht Anfang November bereits das 50 hPa Niveau. Diese Daten zeigen, dass der Polarwirbel bis Anfang Oktober bis in die untere Stratosphäre hinein ungestört blieb. Im Oktober beginnt die Umstellung des Windes und die endgültige Erwärmung in der oberen Stratosphäre setzte ein.

In Abbildung 2.3 sind die Minimumtemperaturen auf 50 hPa gezeigt. Bis Anfang Oktober 2003 befinden sich die Temperaturen am unteren Rand der Verteilung klar unterhalb des klimatologischen Mittels. Mitte Oktober gleichen sie sich dann dem klimatologischen Mittel an.

In Abbildung 7.3 ist A_{PSC} für den antarktischen Winter 2003 gezeigt, und wurde ebenfalls aus EZMW Daten berechnet. Bereits Mitte Mai sind die Temperaturen im Bereich um $\Theta = 520$ K tiefer als T_{NAT} . Im größten Teil des betrachteten Höhenbereich zwischen $\Theta = 350$ und 700 K blieben die Bedingungen für die Existenz von PSC Typ Ia bis in den Oktober bestehen. Dabei wurde eine maximale Ausdehnung von A_{PSC} bis zu $28 \cdot 10^6$ km² berechnet, was der maximalen Wirbelfläche des arktischen Polarwirbels im Winter 2002/2003 entspricht. Während des arktischen Winters 2002/2003 wurde die maximale Ausdehnung von A_{PSC} zu $\sim 16 \cdot 10^6$ km² berechnet. In Abbildung 7.3 fällt eine bimodulare Struktur der Temperaturverteilung auf. So ergeben sich zwei scheinbare Maxima tiefer Temperaturen im Bereich um $\Theta = 400$ und $\Theta = 540$ K, wohingegen die Temperaturen auf dem $\Theta = 475$ K Niveau den ganzen Winter über scheinbar höher gewesen sind.

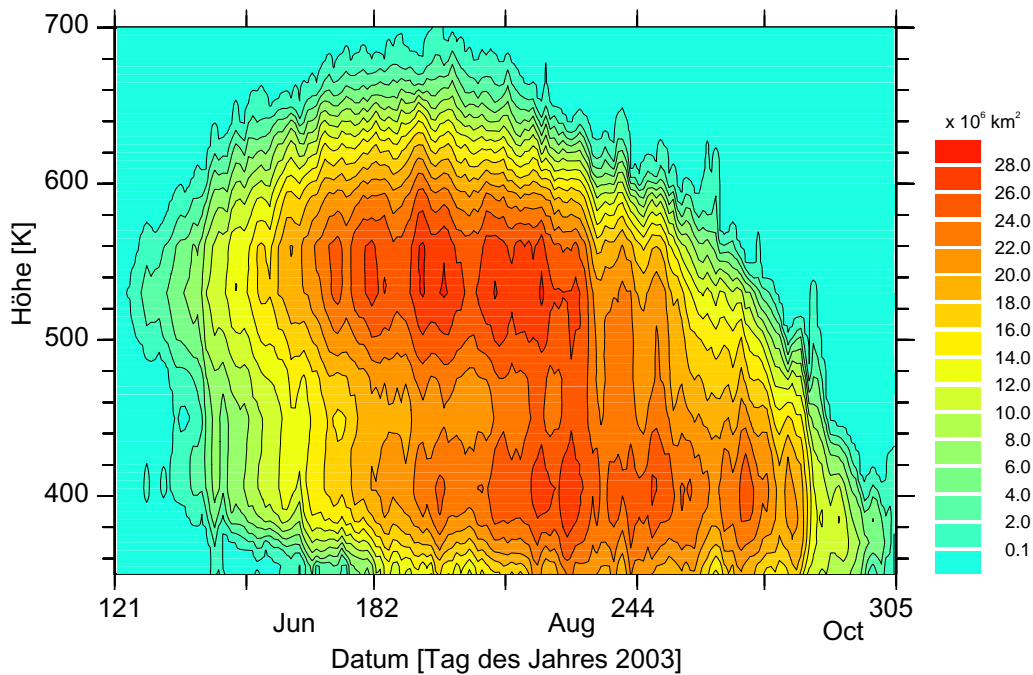


Abbildung 7.3: A_{PSC} für den antarktischen Winter 2003 im Höhenbereich zwischen $\Theta = 350$ und 700 K. Die Ausdehnung der Fläche ist farbig kodiert.

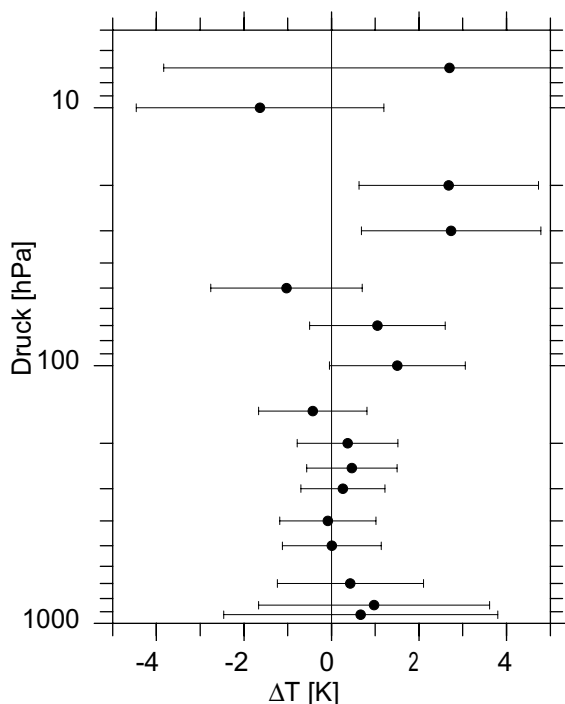


Abbildung 7.4: Differenz zwischen der gemessenen Temperaturen von Radiosonden und den ERMW Daten am Ort der Sondenmessung als Mittel von Juni - Juli 2003. Als Fehlerbalken ist die Standardabweichung angegeben.

Bereits während der Kampagnenkoordinierung war diese Struktur aufgefallen. Um zu verstehen, ob es sich dabei um eine stratosphärische Besonderheit der Südhemisphäre oder eine Unzulänglichkeit der ERMW Daten handelt, wurden die Temperaturen aus den ERMW Daten mit denen aus ca. 200 Radiosondenmessungen verglichen, die bis zu diesem Zeitpunkt geflogen wurden. Dazu wurden die ERMW Daten zu den Punkten der Sondenmessungen interpoliert und die Differenz zwischen den gemessenen Temperaturen der Radiosondierungen und der modellierten Temperaturen aus den ERMW Daten gebildet und gemittelt. In Abbildung 7.4 sind die gemittelten Differenzen mit der Standardabweichung gezeigt. Innerhalb des Zeitraums Mitte Juni bis Mitte August, in dem die 200 Sonden gestartet wurden, sind die modellierten Temperaturen des ERMW auf dem 100 hPa Niveau und auf dem 70 hPa Niveau im Mittel $\sim 1,5$ K bzw. ~ 1 K zu kalt. Auf dem 50 hPa dreht sich das Vorzeichen um und die Temperaturen in den ERMW Daten sind ~ 1 K zu

warm. Danach dreht sich der Gradient wieder um und die ERMW Temperaturen sind auf dem 30 hPa Niveau $\sim 2,5$ K zu kalt. Der Vergleich in größeren Höhen ist nicht aussagekräftig, da auf diesen Höhen die Anzahl der vergleichenden Sonden bereits stark abgenommen hat. Der Kon-

takt mit dem EZMW ergab, dass der Fehler im Datensatz des gesamten Winters vorhanden ist (persönliche Mitteilung Simmons, 2003). Aufgrund einer Temperaturkorrektur der EZMW-Daten entstehen diese “artificial” Temperaturosillationen in der Stratosphäre, die sich vor allem an den Polen und in der Südhemisphäre bemerkbar machen (Simmons et al., 2005).

Dieser Vergleich zeigt, dass die Temperaturen des EZMW im betrachteten Zeitraum einen systematischen Fehler haben, der dazu führt, dass die Temperatur auf dem 50 hPa Niveau zu hoch und auf den umliegenden Niveaus zu niedrig ist. Dies erklärt die bimodulare Struktur in Abbildung 7.3.

Des Weiteren wird diese Unzulänglichkeit auch andere Auswirkung auf die Matchanalyse des Winter 2003 haben. Durch die fehlerhaften Temperaturwerte wird die potentielle Temperatur falsch bestimmt. In die Berechnung der PV nach Gleichung (2.1) geht die Ableitung der potentiellen Temperatur nach dem Druck ein. Daher ist die berechnete PV ebenfalls von dem Fehler betroffen.

In Abbildung 7.5 sind drei PV-Karten auf dem $\Theta = 475$ K Niveau für den antarktischen Wirbel 2003 gezeigt. Abbildung 7.5 (a) zeigt den Wirbel zu Beginn der Kampagne. Abbildung 7.5 (b) zeigt den 09. September 2003 und Abbildung 7.5 (c) den 11. Oktober 2003. Für alle Tage liegt der Wirbel zentrisch über dem geographischen Südpol. Mit der Zeit nimmt die PV innerhalb des Wirbels zu. Die Zunahme der PV wird durch das Absinken der Luftmassen im Wirbel hervorgerufen (Schoeberl et al., 1992; Nash et al., 1996). Wie in Kapitel 2 dargestellt, wird durch die Abwesenheit der Sonne am Anfang des Winters und durch den meridionalen Transport das diabatische Absinken der Luftmassen angetrieben. Mit dem Absinken der Luftmassen werden nicht nur die Spurengase in den Luftpaketen, sondern auch die PV der Luftpakete abwärts transportiert. Das führt zu einem stetigen Anstieg der PV auf einer isentropen Fläche. Das Absinken in der Südhemisphäre oberhalb von bzw. auf 900 K ist im Wirbelzentrum am größten. In der unteren Stratosphäre, unterhalb von 600 K, findet das stärkste Absinken nahe der Wirbelgrenze statt (Schoeberl et al., 1992; Manney et al., 1994). Das führt dazu, dass die höchsten PV-Werte in einem “Ring” um die antarktische Küste herumliegen. Dies ist gut in Abbildung 7.5 (a) und (b) zu erkennen. Prinzipiell gibt es dasselbe Verhalten auch in der Arktis, allerdings wird das strahlungsbedingte Absinken der Luftmassen oft durch starke Wellenaktivität beeinflusst, so dass es zu stärkerem Absinken im ganzen Wirbel kommt (Manney et al., 1994a; Manney et al., 1999). Dieser Effekt tritt in erster Linie zu Beginn des Winters bis in das Frühjahr auf.

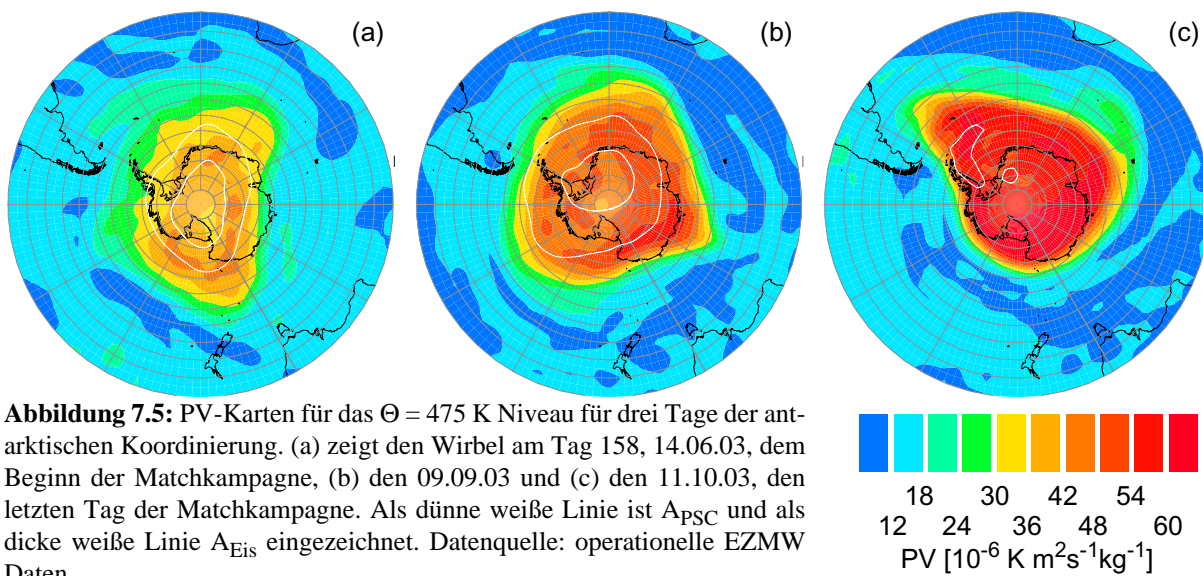


Abbildung 7.5: PV-Karten für das $\Theta = 475$ K Niveau für drei Tage der antarktischen Koordinierung. (a) zeigt den Wirbel am Tag 158, 14.06.03, dem Beginn der Matchkampagne, (b) den 09.09.03 und (c) den 11.10.03, den letzten Tag der Matchkampagne. Als dünne weiße Linie ist A_{PSC} und als dicke weiße Linie A_{Eis} eingezeichnet. Datenquelle: operationelle EZMW Daten

Dem entgegensteht, dass das diabatische Absinken der Luftmassen eine Änderung der Schichtungsstabilität bewirkt, die zu einer Abnahme der PV auf einer isentropen Fläche führt. Dieser Prozess dominiert im Frühjahr und trägt zum Zusammenbruch des Wirbels bei (Nash et al., 1996; Sinnhuber, 1999).

7.1.1 Die Wirbelgrenze

Für die Antarktis wurde bereits wie für die Arktis eine Anpassung der Wirbelgrenze mit der Zeit durchgeführt. Dabei wurde die in Abschnitt 4.2.2 vorgestellte Methode genutzt. Im Gegensatz zur Arktis ist der Gradient am antarktischen Wirbelrand größer. Die verwendeten PV-Daten auf isentropen Niveaus (u.a. $\Theta = 400, 435, 475, 550$ K) wurden für jeden Tag um 12 Uhr aus den EZMW Daten von Dr. B. Knudsen am Dänisch Meteorologischen Institut (DMI) Kopenhagen berechnet und über das NILU verteilt. Auf den oben genannten isentropen Flächen wurde die Lage des maximalen Gradienten ermittelt, siehe Tabelle 7.1, und auf die genutzten Niveaus interpoliert.

Tabelle 7.1: Wirbelgrenze für die isentropen Niveaus $\Theta = 400, 435, 475$ und 550 K in normierter PV [s^{-1}].

Tag des Jahres	Datum	400 [K]	435 [K]	475[K]	550 [K]
160	09.06.2003	36	36	32	36
170	19.06.2003	37	37	33	38
180	29.06.2003	38	38	35	40
190	09.07.2003	39	40	36	42
200	19.07.2003	40	42	37	44
210	29.07.2003	42		38	
220	08.08.2003	44		39	
230	18.08.2003			40	

Der angegebene Tag gibt den Wert an, an dem der normierte PV-Wert erreicht wird. Im Anschluss an den letzten Wert wird die PV-Grenze konstant gehalten. Der letzte Wert ergibt sich als Mittelwert aller ermittelten Wirbelgrenzen der darauf folgenden Tage. Im Gegensatz zur Arktis ist der Wirbelrand kein wesentliches Ausschlusskriterium für Matche, da der Polarwirbel in der Regel konzentrisch um den Pol liegt und damit die meisten Stationen selten in den Bereich des Wirbelrands kommen.

7.1.2 Die Wirbelfläche

Abbildung 7.6 stellt die Fläche auf dem $\Theta = 475$ K Niveau des Wirbels dar, die auf der Grundlage der Wirbelaußengrenze aus Tabelle 7.1 berechnet wurde. Im Gegensatz zur Arktis ist durch den ungestörten Winter keine Reduktion der Wirbelfläche über die Zeit zu beobachten, sondern eine leichte Zunahme der Fläche. Das wird durch das Absinken der PV-reichen Luftmassen erklärt. Die Fläche innerhalb des Wirbels wächst langsam von $28 \cdot 10^6$ km² auf Werte um

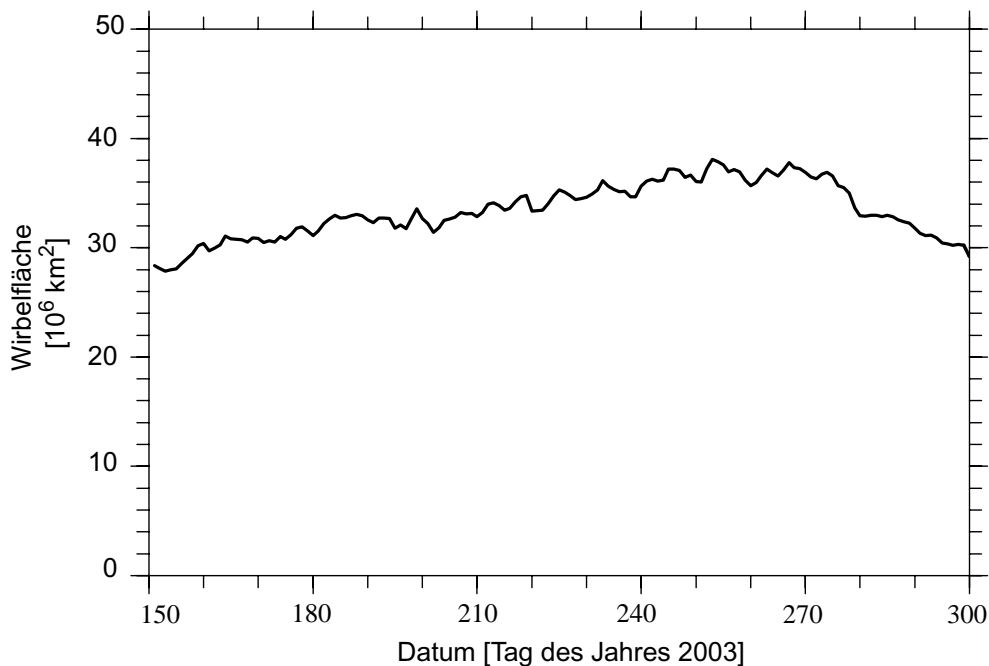


Abbildung 7.6: Wirbelfläche [10^6 km^2] auf der $\Theta = 475 \text{ K}$ Isentrope, die nach den in Tabelle 7.1 gezeigten Wirbelgrenzen berechnet wurde. Datenquelle: operationelle EZMW-Daten

$37 \cdot 10^6 \text{ km}^2$ Ende September an. Ab dem 10. Oktober nimmt die Fläche kontinuierlich ab. Zu diesem Zeitpunkt fand, wie auch in Abbildung 7.2 zu sehen ist, die langsame Umstellung von West- auf Ostwinde und die Umkehr des Temperaturgradienten zwischen 60° S und dem Südpol statt, was eine Störung des Wirbels bzw. den Beginn der endgültigen Erwärmung anzeigt.

In Abbildung 7.7 ist die Fläche des “Ozonlochs” des Winters 2003 im Vergleich mit vorhergehenden Wintern wiedergegeben. Die Daten stammen aus Messungen vom “Solar Backscatter Ultra Violet Instrument” (SBUV/2), das auf den “National Oceanic and Atmospheric Administration-Satelliten” (NOAA) fliegt. Zur Fläche des “Ozonlochs” von 2003 sind im Vergleich die minimalen und maximalen Flächen der vorhergehenden Jahre 1993-2002 gezeigt, und die Fläche aus dem Jahr 2002, die ab Mitte September die Kurve der Minimalausdehnung ersetzt. Bis Ende September übertrifft die Fläche aus dem Jahr 2003 an den meisten Tagen die Maximalausdehnung der vorangegangenen zehn Jahre. Dies ist auch in den Minimumtemperaturen in Abbildung 2.3 zu sehen. Bis Anfang Oktober liegen die Minimumtemperaturen an der unteren Einhüllenden des klimatologischen Mittels und steigen während des Oktobers zur oberen Einhüllenden an. In der ersten Oktoberhälfte nimmt die Fläche rapide ab und erreicht Anfang November Werte nahe der Minimalausdehnung des Jahres 2002. Mitte November liegt die Ozonsäulendichte bereits einen Monat früher als im Zehnjahresmittel über dem durch die WMO festgelegten Schwellenwert für das “Ozonloch”. Daraus kann geschlossen werden, dass es im Winter 2003 zu einer früheren Zirkulationsumstellung als im klimatologischen Mittel von 1993-2002 kam.

7.2 Matchergebnisse

7.2.1 Verteilung der Matche im Wirbel

In Abbildung 7.8 ist die Verteilung bzw. Lage der Matche im PV-Raum auf den Niveaus $\Theta = 400, 475, 550 \text{ K}$ dargestellt. Zur Definition der *relativen Lage* siehe Abschnitt 6.2.1. Alle Höhen zeigen, dass der PV-Raum nur unzureichend beprobt wurde. Die äußeren 20% des PV-

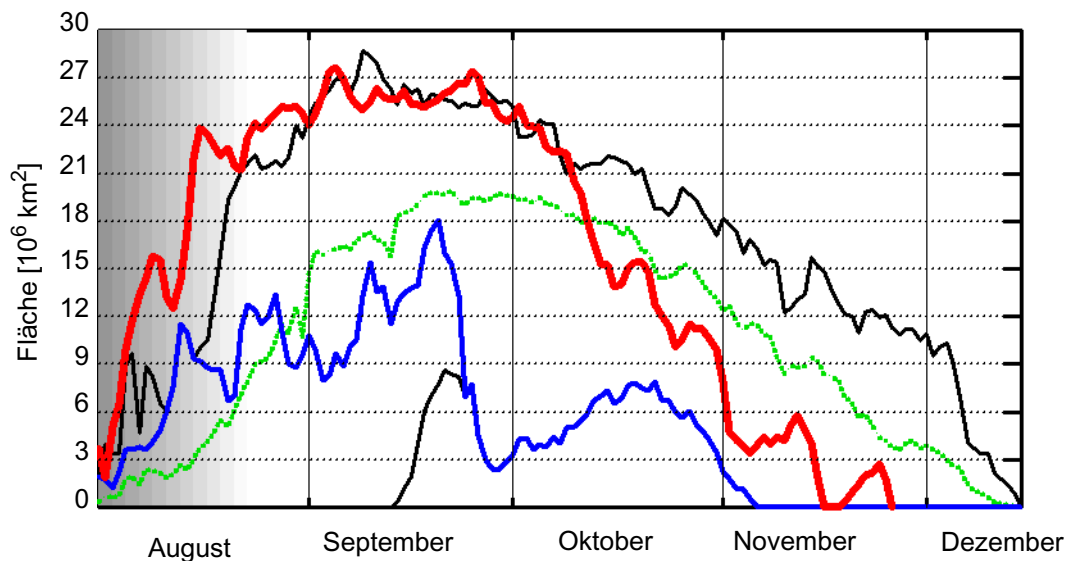


Abbildung 7.7: Geographische Fläche über der Südhemisphäre, in der die Ozonsäulendichte niedriger als 220 DU ist. Die rote Kurve gibt die Entwicklung des “Ozonlochs” im Jahre 2003 wieder. Die schwarzen Linien geben die Minimal- und Maximalausdehnung des “Ozonlochs” und die grüne Linie gibt das Mittel zwischen 1993-2002 wieder. Die blaue Linie zeigt die Daten des Jahres 2002. Quelle: http://www.cpc.ncep.noaa.gov/products/stratosphere/sbuv2to/gif_files/ozone_hole_plot.png.

Raumes wurden sehr viel schlechter beprobt als die inneren 80%. Auf dem $\Theta = 550$ K Niveau wurden auch die inneren 30% zu Anfang des Winters nicht abgedeckt. Auf dem $\Theta = 475$ K zeigt sich eine Konzentration der Messungen zwischen 0 und 20% von Juli bis September. Dies kann mit dem im Abschnitt 7.1 angesprochenen unterschiedlichen Absinken der Luftmassen im Wirbel erklärt werden. Da die Stationen an der Küste der Antarktis liegen, werden die Sonden in einen Bereich des Wirbels gestartet, in dem die höchsten PV-Werte liegen (siehe Abbildung 7.5). Es besteht keine gute Korrelation mehr zwischen dem geographischen Zentrum des Wirbels und den höchsten PV-Werten. Durch die Konzentration der Stationen in diesem Bereich ergibt sich auch eine Konzentration der Matche in diesem Teil des PV-Raums auf diesem Niveau. Die Verteilung der Matche auf dem $\Theta = 400$ K Niveau ähnelt der Verteilung auf dem $\Theta = 550$ K Niveau. So wurden auch hier zu Beginn des Winters die inneren 30% des Wirbels nicht beprobt.

Im Falle der antarktischen Matchkampagne wurde keine homogene Beprobung des Wirbels erreicht und so stellen die Abbauraten keine Wirbelmittel dar.

Abbildung 7.9 zeigt die mittlere Sonnenscheindauer im antarktischen Polarwirbel 2003. Die Definition der inneren und äußeren Fläche des Wirbels erfolgte bisher über die PV-Werte. Niedrige PV-Werte wurden dem Wirbelrand und hohe PV-Werte wurden dem Wirbelzentrum zugeordnet. Dies ist problematisch, da wie oben diskutiert geographisch außerhalb des Polarwirbelzentrums liegende Bereiche hohe PV-Werte enthalten. Allerdings scheinen diese hohen PV-Werte im Mittel in den geographisch inneren 50% der Wirbelfläche zu sein, da sich sonst der Verlauf der Kurven in Abbildung 7.9 nicht erklären lässt. Daher werden für die weitere Diskussion die Begriffe der inneren und äußeren 50% des Polarwirbels beibehalten. Die mittlere Sonnenscheindauer der gesamten Polarwirbelfläche ist deutlich unterschiedlich zu den inneren und äußeren 50% der Polarwirbelfläche, wie in Abbildung 7.9 zu erkennen ist. Am 22. Juni bzw. Tag 173 ist die Sonnenwende in der südlichen Hemisphäre. Zu diesem Zeitpunkt ist der Anteil des Sonnenlichtes im Polarwirbel auf einem Minimum geschrumpft und beträgt

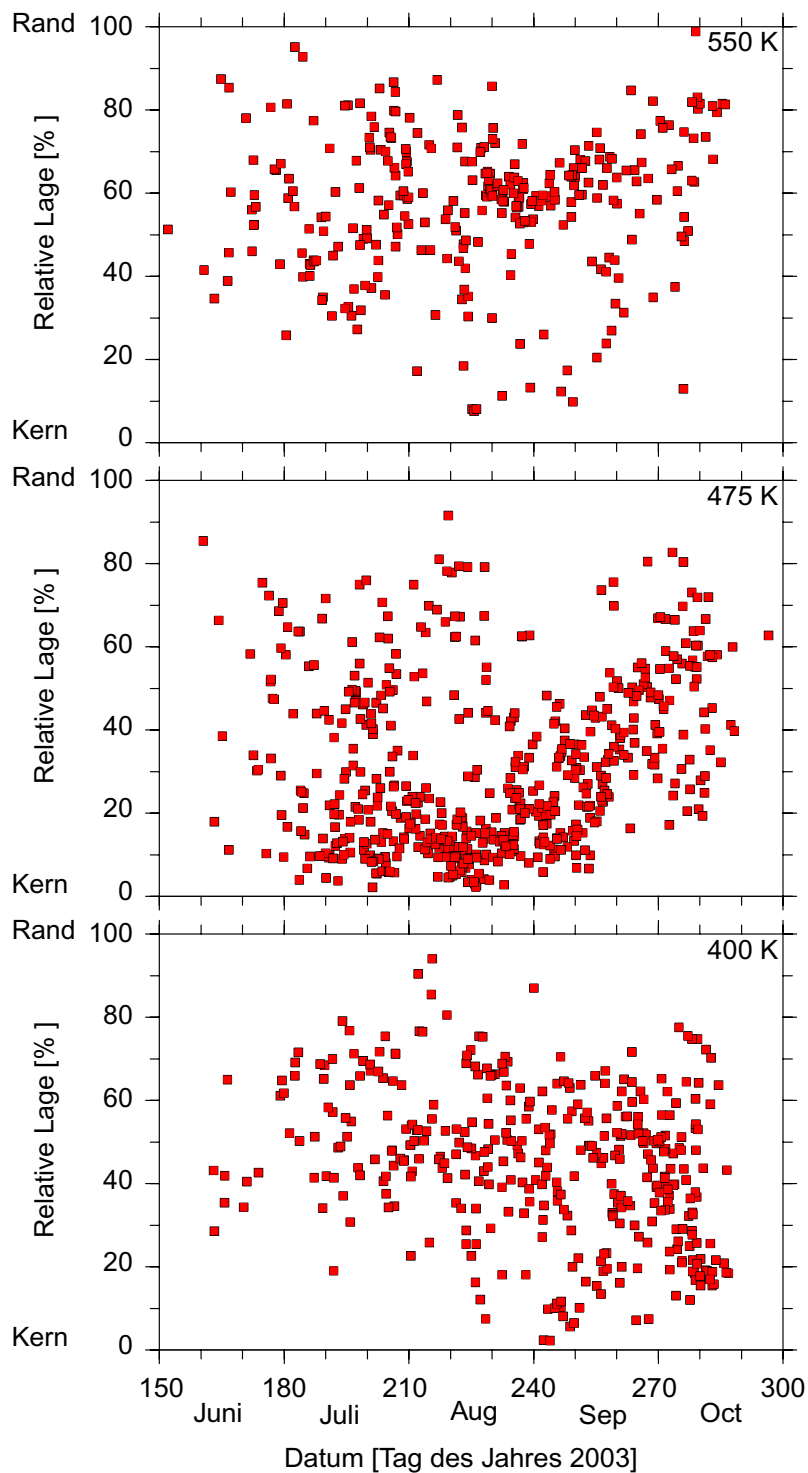


Abbildung 7.8: Die roten Punkte geben die relative Lage der Messung innerhalb des prozentualen PV-Feldes für die drei Höhen $\Theta = 550, 475$ und 400 K wieder.

14% im gesamten Wirbel, während die inneren 50% des Wirbels bei einer Tageslänge von 4% die äußeren 50% des Wirbels bei einer Tageslänge von 24% liegen. Die geringste Abweichung zwischen dem inneren und äußeren Teil des Wirbels wird zwischen dem Tag 250 und 260 be-

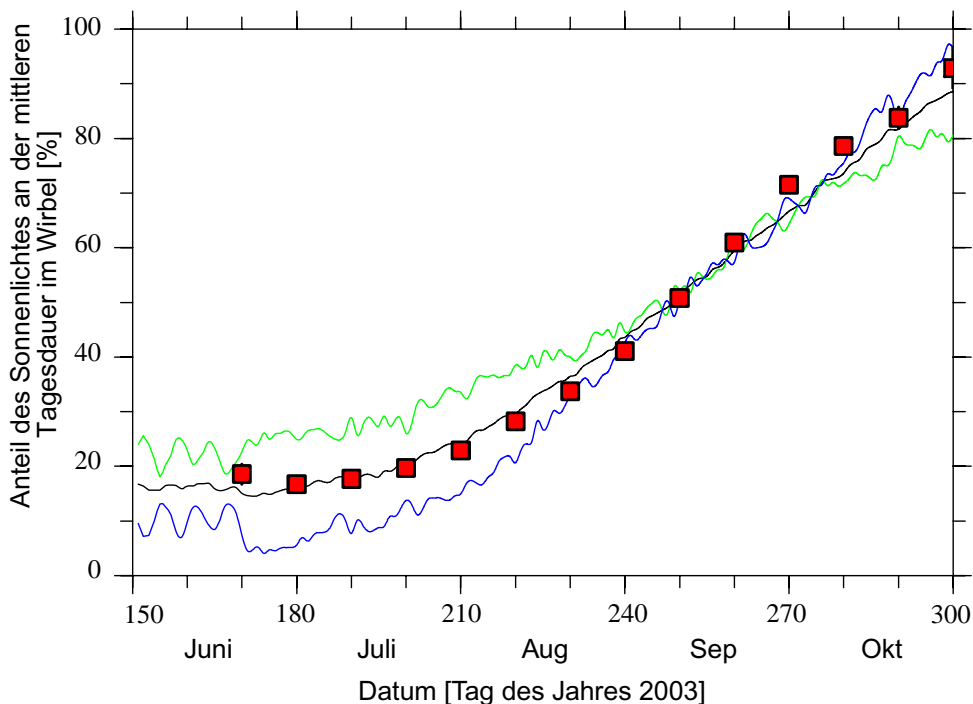


Abbildung 7.9: Mittlere Sonnenscheindauer im Wirbel auf dem $\Theta = 475$ K Niveau. Das Wirbelmittel ist als schwarze Kurve eingezeichnet. Die 50% der Wirbelfläche mit den geringeren PV-Werten ist in grün die 50% der Polarwirbelfläche mit größeren PV-Werten ist in blau eingezeichnet. Die roten Quadrate geben die mittlere Sonnenscheindauer der verwendeten Trajektorien wieder.

rechnet. Dies stimmt mit der Tagundnachtgleich überein, die um den 22. September bzw. Tag 265 liegt. Allerdings bezieht sich dieses Datum auf die Tagundnachtgleiche am Erdboden. In größeren Höhen, in ca. 18 km, wird das Equinox bereits etwas früher erreicht. Um den Tag 280 kreuzen sich die Kurven und der innere Teil des Wirbels sieht mehr Sonne als der äußere. Während am Südpol nun für knapp sechs Monate Polartag herrscht, nimmt die Sonnenscheindauer im Außenbereich des Wirbels, der bei einer äquivalenten Breite von ca. 58° - 62° liegt, bereits wieder ab.

Die mittleren Anteile der Sonnenscheindauern der verwendeten Trajektorien auf dem $\Theta = 475$ K Niveau sind als rote Quadrate eingezeichnet. Obwohl eine Konzentration der Matche bei hohen PV-Werten stattgefunden hat, ist der Sonnenzenithwinkelraum gut ausgefüllt worden. Die mittlere Sonnenscheindauer der Trajektorien stimmt gut mit der mittleren Sonnenscheindauer des Wirbels überein. Dies ist darauf zurückzuführen, dass sich die meisten Stationen an der Küste des antarktischen Kontinents befinden und somit bei ca. 40%-50% der Wirbelfläche liegen. Die leichten Abweichungen zwischen der mittleren Sonnenscheindauer im Wirbel und der Trajektorien ergeben sich daraus, dass die Stationen Belgrano 2, McMurdo und Amundsen-Scott weit im Wirbelinneren liegen.

7.2.2 Ozonabbauraten

Für den antarktischen Winter konnte eine Auswertung auf den Höhenniveaus von $\Theta = 375$ - 575 K erzielt werden. Dazu wurden die Daten in Höhenbereichen von ± 10 K potentieller Temperatur um die Niveaus $\Theta = 375, 400, 425, 450, 475, 500, 525, 550$ und 575 gemittelt. Die Abbauraten sind laufende Mittel von ± 10 Tagen. In Abbildung 7.10 und Abbildung 7.11 werden drei Niveaus in vergleichbarer Weise zur arktischen Matchauswertung gezeigt. Dabei wird das

$\Theta = 400$ K Niveau als untere Grenze, das $\Theta = 475$ K Niveau und das $\Theta = 550$ K Niveau als obere Grenze des durch die Matchanalyse abgedeckten Höhenbereichs gewählt. Auf allen Niveaus sind zwischen Juni und Anfang Oktober die Temperaturen niedriger als T_{NAT} bzw. T_{Eis} , so dass im Gegensatz zu Arktis die Bedingungen einer permanenten Chloraktivierung gegeben sind (siehe Abbildung 7.3).

Auf dem $\Theta = 550$ K Niveau sind die ersten Abbauraten mit großen Fehlern behaftet und zeigen Werte um 4-5 ppbv / Sonnenstunde, die auf Werte um 2 - 3 ppbv / Sonnenstunde an den Tagen 200-210 zurückgehen. Zu Beginn des Winters sind die Sonnenzeiten entlang der Trajektorie sehr kurz, was den Zeitachsenhebel in der Regression klein hält, und damit zu einem größeren Fehlerbalken führt. Im Rahmen der Fehlerbalken kann man annehmen, dass von Juni-August Abbauraten von ~ 3 ppbv / Sonnenstunde geherrscht haben. Am Tag 250 wird die größte Abbaurate mit ~ 5 ppbv / Sonnenstunde berechnet. Danach nimmt die Abbaurate wieder ab. Auf dem $\Theta = 475$ K Niveau zeigt sich ein ähnliches Verhalten. Auch hier ist Ozonabbau bereits im Juni messbar. Es gibt eine leichte Abschwächung des Ozonabbaus zum Tag 210 hin. Danach wachsen die Ozonabbauraten stark an und am Tag 240 wird eine maximale Ozonabbaurate von $6,3 \pm 0,6$ ppbv berechnet. Auch hier gibt es einen starken Abfall der Abbaurate nach dem Tag 250. Auf dem $\Theta = 400$ K Niveau gibt es zu Beginn des Winters keinen Abbau. Dieser steigt auf Werte um 4 ppbv / Sonnenstunde am Tag 240 an, um danach wieder stark abzunehmen. Der Rückgang der Ozonabbauraten ab dem Tag 250 ist auf die fast vollständige Zerstörung des Ozons zurückzuführen. Da sich vielerorts kein Ozon mehr im gezeigten Höhenbereich befindet viele Ozonsonden kein Ozon im gezeigten Höhenbereich messen, kann kein weiterer Ozonabbau mehr stattfinden. Der Rückgang ist also kein Phänomen abnehmender Chloraktivierung, sondern auf die komplette Zerstörung des Ozons zurückzuführen.

Abbildung 7.11 zeigt die Ozonabbauraten in ppbv / Tag. Da die Abbauraten / Sonnenstunde keine Wirbelmittel repräsentieren, werden die Ozonabbauraten aus einer Regression der Ozonänderung gegen die Gesamtflugdauer berechnet. Aufgrund der guten Übereinstimmung der Kurven in Abbildung 7.9 ergibt sich aber nur eine geringe Abweichung zu den Ozonabbauraten, die über die wirbelgemittelte Sonnenzeit berechnet wird. Vergleicht man den Verlauf der Ozonabbauraten in ppbv / Tag mit den Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde wird ein Unterschied erkennbar. Während die Ozonabbauraten / Sonnenstunde in derselben Größenordnung den ganzen Winter über bleiben bzw. sich verdoppeln, verdreifachen sich die Ozonabbauraten in ppbv / Tag um den Tag 240 herum. Es herrschen bereits zu Beginn des Winters Bedingungen, die Ozonabbau hervorrufen, wie man an den Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde sehen kann. Allerdings haben diese Abbauraten einen geringen Einfluss auf das Gesamt Ozon, da die Sonnenzeit noch zu kurz ist und daher die Ozonabbauraten in ppbv / Tag noch klein sind. Um den Tag 240 steigen die Ozonabbauraten auf maximal Werte zwischen 60 und 70 ppbv / Tag in allen Höhenbereichen an.

7.2.2.1 Höhenzeitschnitt der Ozonabbauraten

In Abbildung 7.12 (a) sind die Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde für den ausgewerteten Höhen- und Zeitbereich angegeben. Die gepunkteten Linien geben das wirbelgemittelte Absinken der Luftmassen gegenüber den Isentropen innerhalb des Polarwirbels wieder. Die absinkenden Luftmassen sind so gewählt, dass sie am 31. Oktober 2003 die potentiellen Temperaturen von $\Theta = 400, 425, 450, 475, 500, 525$ und 550 K erreicht haben. Diese potentiellen Tempera-

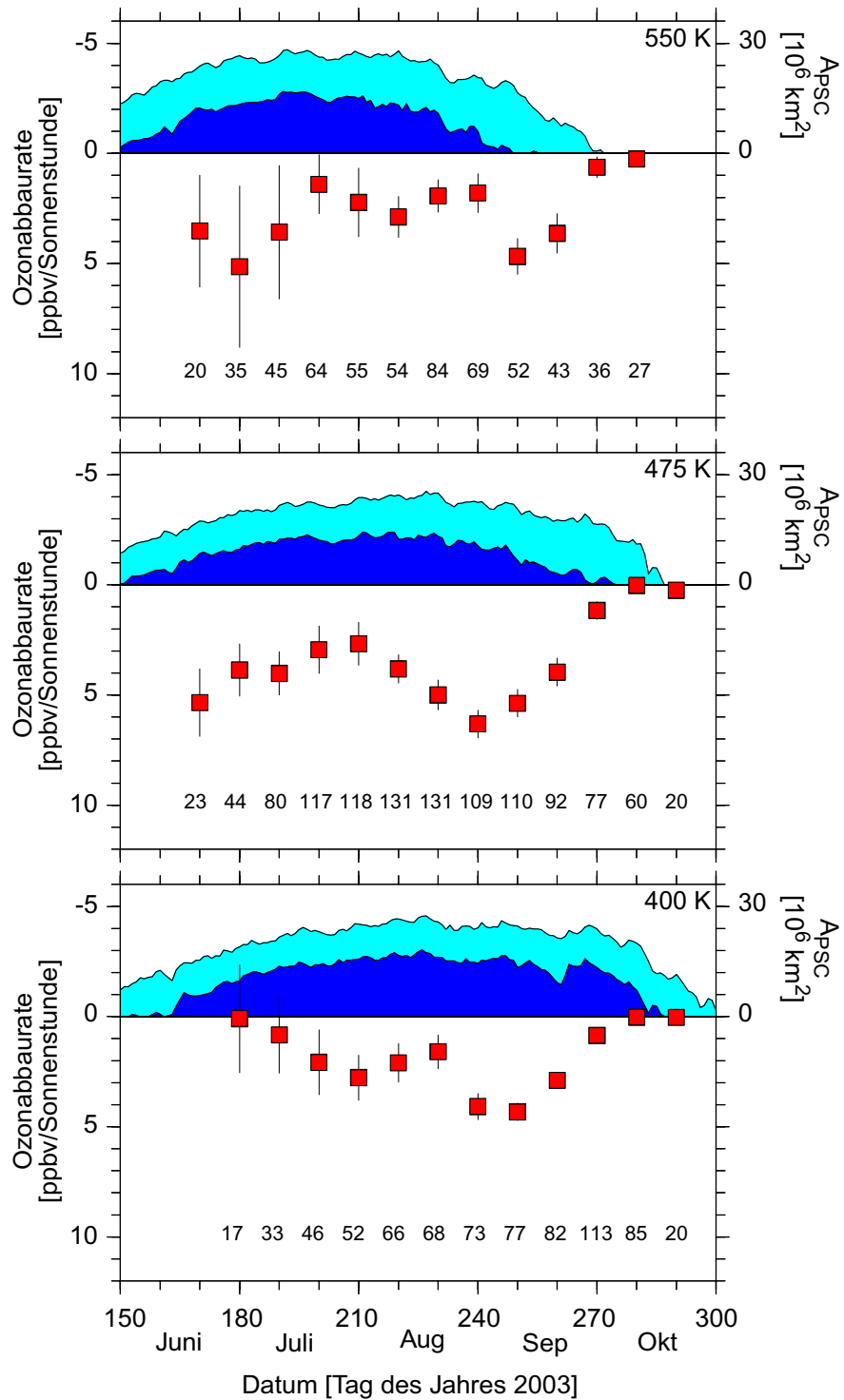


Abbildung 7.10: Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde auf den Niveaus $\Theta = 550, 475, 400 \text{ K}$. Im unteren Teil der Teilbilder sind die Abbauraten als rote Quadrate mit dem statistischen 1σ Fehler gezeigt. Im oberen Bereich der Graphen ist A_{PSC} in hellblau und A_{Eis} in dunkelblau aufgetragen. Die kleinen Zahlen am Boden der jeweiligen Teilabbildung geben die Anzahl der Matche, die in die Regression eingegangen sind, an.

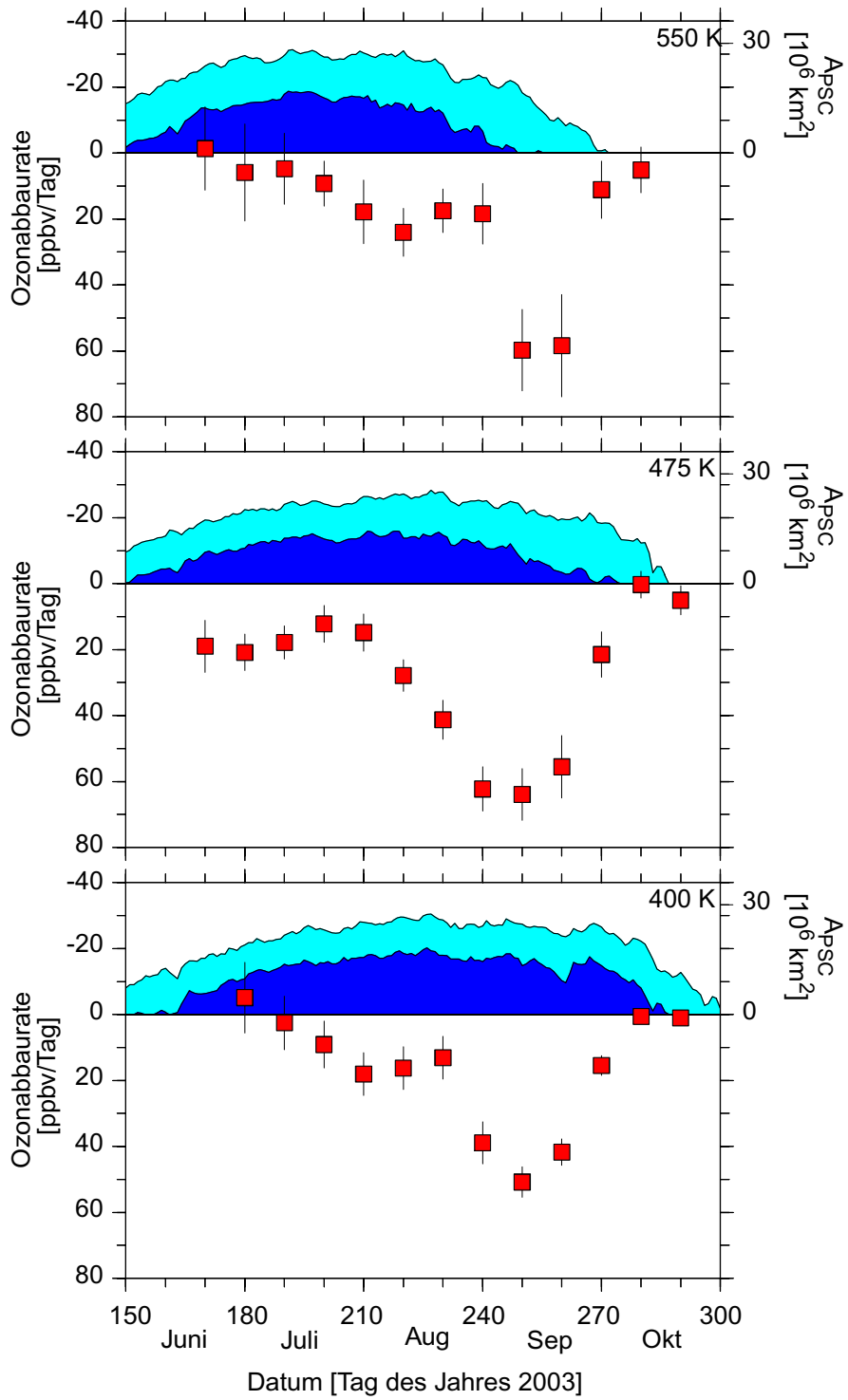


Abbildung 7.11: Wie Abbildung 7.10 für Ozonabbauraten in ppbv / Tag auf den Niveaus $\Theta = 550, 475, 400$ K.

turniveaus werden im Anschluss als äquivalente potentielle Temperaturen bezeichnet und beziehen sich auf die Höhe der Luftpakete am 31. Oktober 2003. Die schwarzen Konturlinien zeigen die Temperaturbedingungen von A_{PSC} und A_{Eis} an.

Bis Mitte August finden sich zwischen den Luftmassen der äquivalenten potentiellen Temperaturen von $\Theta = 425$ K und 525 K Ozonabbauraten im Mittel von $\sim 3,5$ ppbv / Sonnenstunde. Darunter sind die Ozonabbauraten kleiner und werden ab Mitte August größer. Oberhalb von 525 K schwanken die Ozonabbauraten stärker. Auf allen Höhengniveaus werden die größten Ozonabbauraten am Tag 240 und 250 erreicht und liegen im Bereich zwischen 4 und 6 ppbv / Sonnenstunde. Da die Aktivierung des Chlors vom Sonnenzenithwinkel abhängig ist, werden die Ozonabbauraten / Sonnenstunde größer, wenn die Sonnenzenithwinkel kleiner werden. Am Tag 265 ist bereits eine drastische Reduzierung der Abbauraten zu sehen und ab diesem Zeitpunkt sind die Abbauraten auf den meisten Höhen kleiner als 1 ppbv / Sonnenstunde.

In Abbildung 7.12 (b) sind die Fehler der Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde eingezeichnet. Zu Beginn des Zeitraums sind die Ozonabbauraten mit den größten statistischen Unsicherheiten belastet. Aus diesem Grund fehlen die Abbauraten zu Beginn des Winters in den unteren Niveaus, die Fläche ist an dieser Stelle ausgeschnitten, da die Ozonabbauraten sehr große statistische Fehler aufwiesen.

Abbildung 7.13 zeigt die Ozonabbauraten in ppbv / Tag für den ausgewerteten Höhenbereich. Auf allen Höhengniveaus ergeben die Ozonabbauraten bis zum Tag 220 Werte von ~ 20 ppbv / Tag. Ab Tag 230 nehmen die Ozonabbauraten auf allen Niveaus drastisch zu. Von Mitte August bis Ende September wird der größte Teil des Ozons im antarktischen Polarwirbel zerstört. Dies ist einerseits mit den längeren Tagezeiten im Polarwirbel und andererseits mit der Änderung des Sonnenzenithwinkels zu erklären. In diesem Zeitraum von Tag 230 bis Tag 260 verdoppelt sich die Sonnenscheindauer im Wirbel, wie aus Abbildung 7.9 entnommen werden kann. Auf dem 575 K Niveau scheint der Ozonabbau erst 10 Tage später einzusetzen. Abbildung 7.13 (b) zeigt die Fehler der Ozonabbauraten in ppbv / Tag. Die Abbauraten sind in diesem Höhenbereich generell mit einem großen statistischen Fehler behaftet. Es ist davon auszugehen, dass der Ozonabbau auch in der darüber liegenden Schicht früher eingesetzt hat, was aber von der Methode nicht erkannt wurde. Genau wie bei den Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde findet man große Unsicherheiten zu Beginn des Analysezeitraums und zum Zeitpunkt der größten Abbauraten. Da der Fehler aus der Abweichung der Punkte zur Regressionsgeraden berechnet wird, ergibt sich im September ein großer statistischer Fehler. In diesem Zeitraum gehen Matche mit starkem Ozonverlust entlang der Trajektorie und Matche mit geringem Ozonverlust in die Regression ein und es ergibt sich eine große Streuung der Punkte um die Gerade. Die Matche mit geringem Ozonverlust zu diesem Zeitpunkt können erklärt werden, wenn man das Mischungsverhältnis der ersten Messung betrachtet. Durch den starken Ozonabbau war das Ozon in den betrachteten Luftpaketen dieser Matche bereits zum Zeitpunkt der ersten Messung zerstört.

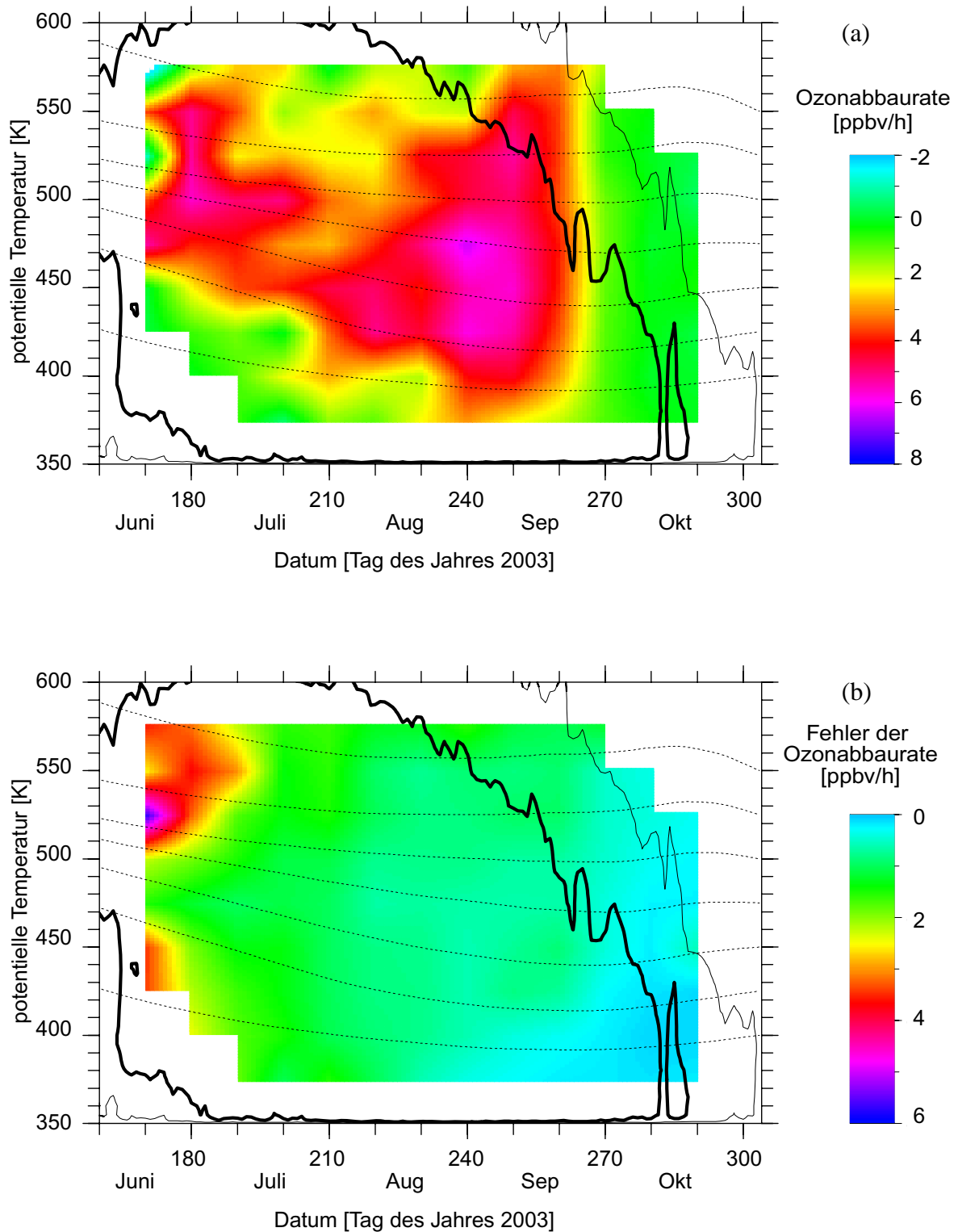


Abbildung 7.12: (a) Höhen-Zeitschnitt der Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde. Die Größe der Abbaurrate ist farbig kodiert. Die gepunktete Linie gibt das wirbelgemittelte diabatische Absinken der Luftmassen wieder. Die dünne durchgezogene Linie gibt die $2.0 \cdot 10^6 \text{ km}^2$ Isolinie für A_{PSC} an und die dicke schwarze Linie die $0,3 \cdot 10^6 \text{ km}^2$ Isolinie für A_{Eis} . Abbildung (b) zeigt die statistische 1σ Unsicherheit für die in (a) gezeigten Abbauraten, sonst wie Abbildung (a).

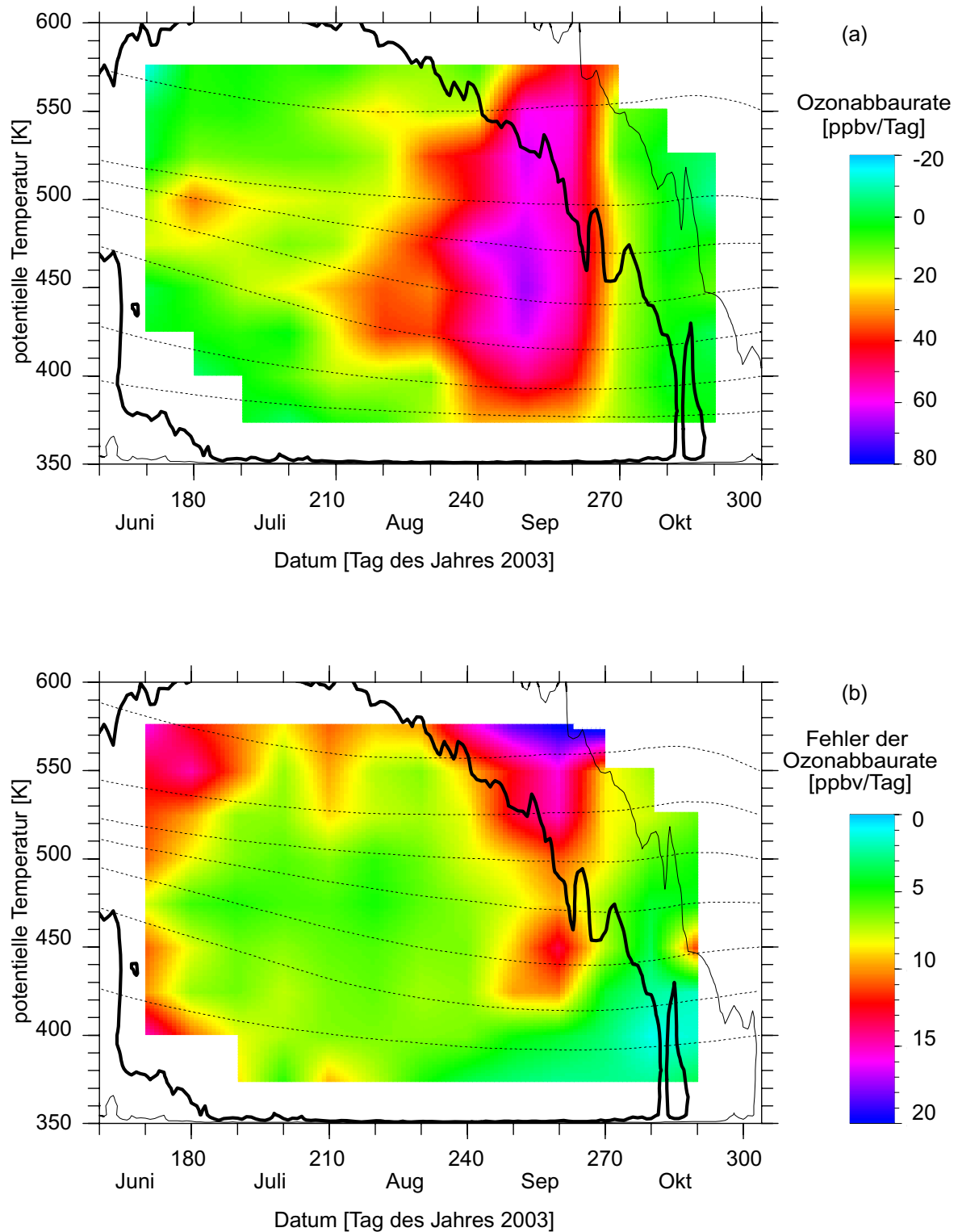


Abbildung 7.13: (a) Höhenzeitschnitt der Ozonabbauraten in ppbv / Tag. Sonst wie Abbildung 7.13.

7.2.3 Sensitivität der Ozonabbauraten auf die diabatischen Heizraten

Wie für die Auswertung in der Arktis wurde auch für die Auswertung in der Antarktis die Abhängigkeit der Ozonabbauraten von den eingesetzten Heizraten bestimmt (siehe Abschnitt 6.2.6). Dabei wurde für die bestehenden Matche das isentrope Niveau, auf dem der Ozonwert der zweiten Sondierung abgelesen wurde variiert. Dafür wurde die Heizrate einmal mit dem Faktor 0,5 und mit dem Faktor 1,5 multipliziert. Für die Auswertung auf dem $\Theta = 550$ K Niveau (nicht gezeigt) ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit der Standardauswertung, was damit erklärt werden kann, dass das Absinken in diesen Bereichen im Wirbel recht gering war. Trotz der Variation der Heizrate wird damit im Profil der zweiten Messung nahe am Ausgangspunkt abgelesen und die Ozondifferenz ändert sich nur geringfügig. Für das $\Theta = 400$ (nicht gezeigt) und 475 K Niveau zeigt sich eine größere Abhängigkeit am Anfang des Winters. Allerdings liegen auch hier die neuen Abbauraten im Bereich der statistischen Unsicherheit. Im Höhenbereich von $\Theta = 400$ und 475 K findet zu Anfang des Winters ein stärkeres Absinken statt (siehe Abbildung 7.12), was die Variation der Ozonabbauraten erklärt. Ab dem Tag 210 wird das diabatische Absinken in diesem Höhenbereich kleiner und man findet eine sehr gute Übereinstimmung der drei verschiedenen Auswertungen.

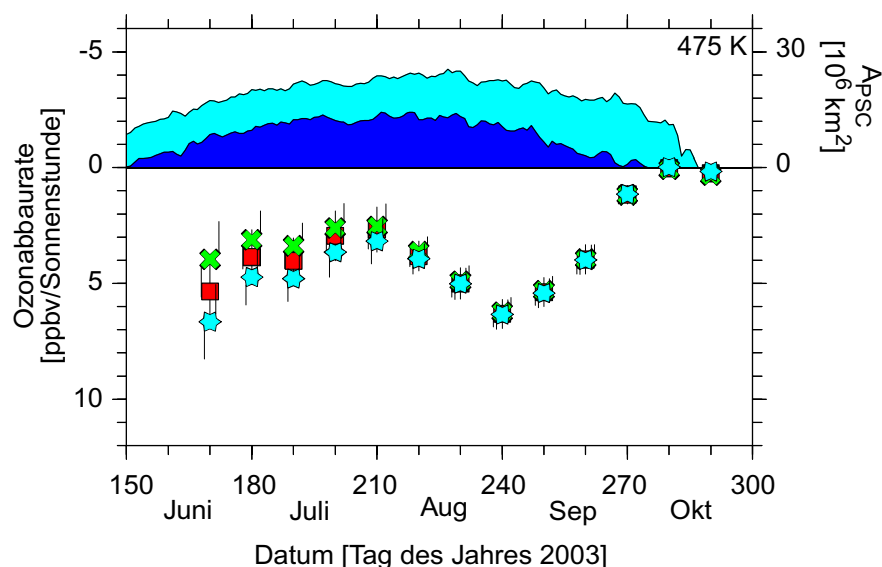


Abbildung 7.14: Sensitivität der Ozonabbaurate in ppbv / Sonnenstunde auf die Heizraten, die zur Berechnung der Trajektorien genutzt wurden ($\Theta = 400, 475$ und 550 K). Die roten Quadrate geben die Ergebnisse der Standardauswertung wieder. Die grünen Kreuze zeigen die Ozonabbauraten bei Multiplikation der Heizraten mit 0,5. Die hellblauen Sterne zeigen die Abbauraten bei Multiplikation der Heizraten mit 1,5.

7.2.4 Test auf den zweiten Matchradius

Wie bereits die Abbauraten des arktischen Winters 2002/2003 wurde auch die Stabilität der Ozonabbauraten des antarktischen Winters auf die Einführung eines weiteren Qualitätsmerkmals, dem Rückwärtmatchradius, getestet. Dazu wurden in dieser Auswertung der Sondenmesspunkt als Startpunkt der zentralen Rückwärtstrajektorie genutzt, im Gegensatz zur arktischen Auswertung, in der die Rückwärtstrajektorien nur auf diskreten Niveaus berechnet wurde. Auch bei dieser Untersuchung wurden alle Qualitätsmerkmale des Vorwärtstrajektorien-Clusters auf den Rückwärtstrajektorien-Cluster übertragen, siehe Abschnitt 6.2.7.

Das Qualitätsmerkmal des Matchradius wurde auf zwei verschiedene Arten getestet. In Abbildung 7.14 ist die Studie gezeigt, bei der der Vorwärtmatchradius konstant auf 500 km gehalten und für den maximal zulässigen Rückwärtmatchradius verschiedene Schwellenwerte, 600, 500 und 400 km, eingesetzt wurden. Die Anzahl der Matche, die in die jeweilige Auswertung eingehen, sind in Tabelle 7.2 angegeben.

Tabelle 7.2: Anzahl der in die Auswertung eingehenden Matche mit unterschiedlichen Schwellenwerten für den Rückwärtmatchradius auf den getesteten Niveaus.

Höhe [K]	400 km	500 km	600 km	Standard
400	122	154	174	374
475	221	271	300	563
550	123	139	150	300

Es ergibt sich für die beiden unteren Niveaus, $\Theta = 400$ und 475 K, eine gute Übereinstimmung für die nach der Standardmethode berechneten Ozonabbauraten mit den Abbauraten, die unter Anwendung der zusätzlichen Qualitätskriterien berechnet wurden. Die Punkte liegen innerhalb ihrer 1σ Fehlerbalken. Auf dem $\Theta = 400$ K Niveau führen die zusätzlichen Qualitätskriterien zu einem starken Anstieg der statistischen Unsicherheit zu Beginn des Winters. Im weiteren Verlauf ergeben sich vergleichbare Fehler. Auf dem $\Theta = 550$ K Niveau schwanken die Punkte stark um die Standardauswertung und die statistische Unsicherheit wird größer.

In Abbildung 7.16 wurden die beiden Matchradien addiert und der so gewonnene kombinierte Matchradius gegen einen Schwellenwert von 1000, 800 und 700 km getestet. Die Anzahl der eingehenden Matche in die jeweilige Auswertung ist in Tabelle 7.3 angegeben.

Tabelle 7.3: Wie Tabelle 7.2 für den kombinierten Matchradius auf den getesteten Niveaus.

Höhe [K]	700 km	800 km	1000 km	Standard
400	107	142	214	374
475	221	261	344	563
550	115	131	179	300

Die Ergebnisse dieser Studie sind der vorhergehenden ähnlich. Die unteren Niveaus zeigen eine gute Übereinstimmung der verschiedenen Auswertungen. Auf dem oberen Niveau sind die Schwankungen groß, aber weniger stark als bei der einfachen Abfrage des Rückwärtmatchradius.

Beide Arten der Abfrage des Rückwärtmatchradius führen zu einer drastischen Reduzierung der eingehenden Matche in die Auswertungen. Trotz allem bleiben die Abbauraten für die Höhenniveaus $\Theta = 400$ und 475 K bei der Wahl eines vernünftigen Ausschlusskriteriums für den Rückwärtmatchradius im Bereich der statistischen Unsicherheit und ist mit der Standardauswertung vergleichbar. Wie bereits in der Arktis gesehen zeigen die Abbauraten höherer Niveaus eine stärkere Sensitivität auf die neuen Qualitätsmerkmale. Dies ist vor allem eine Folge der drastischen Reduzierung der eingehenden Matche in die Regressionen.

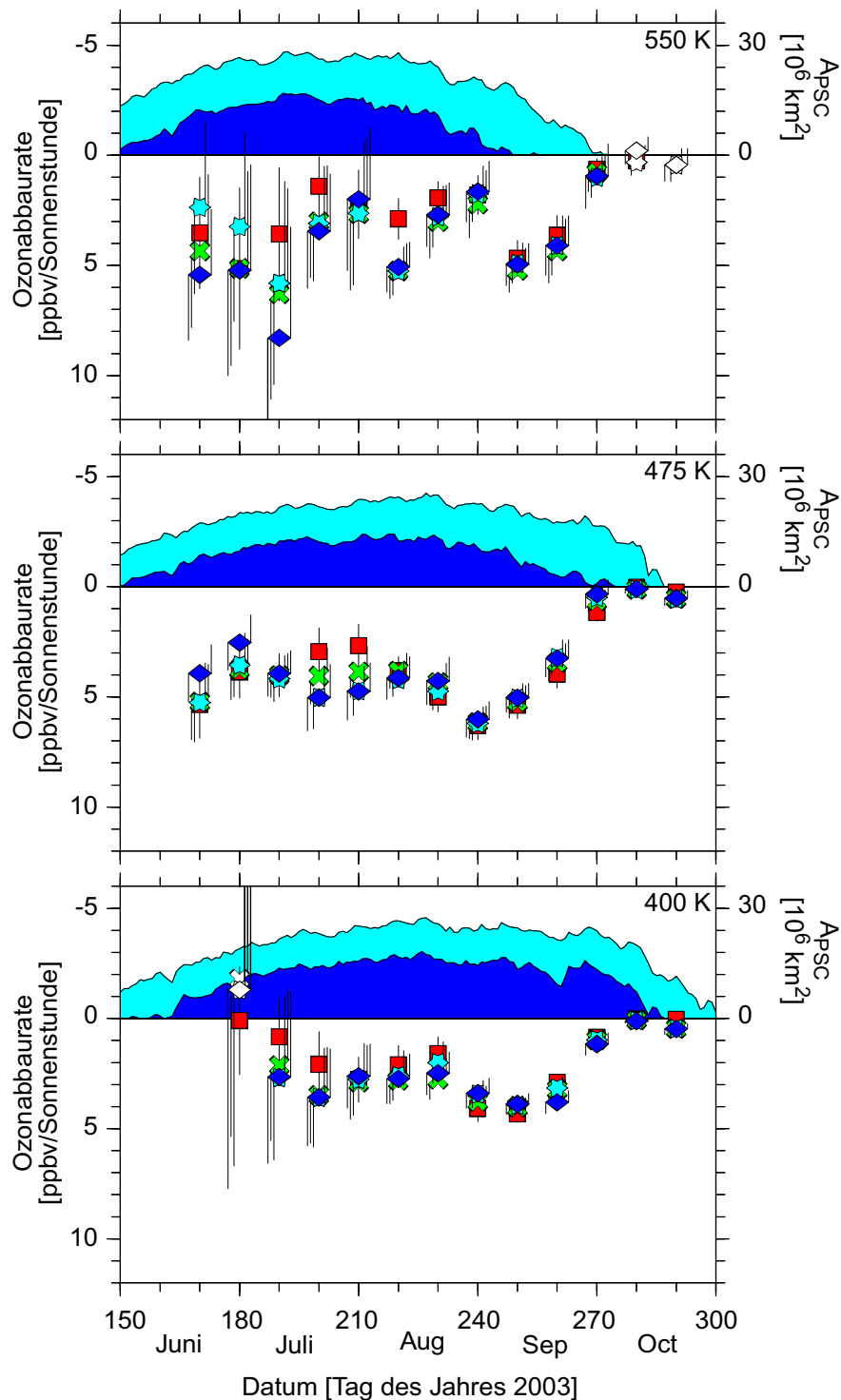


Abbildung 7.15: Sensitivität der Ozonabbauraten auf die Einführung eines zweiten Rückwärtsmatchradius. Dabei wurde der maximal Vorwärtsmatchradius bei 500 km konstant gehalten und der maximale Rückwärtsmatchradius auf 600 km (grüne Kreuze), 500 km (hellblaue Sterne) und 400 km (dunkelblaue Rhomben) gesetzt. Die roten Quadrate geben die Standardauswertung wieder. Die Fehlerbalken geben die statistische 1 σ Unsicherheit an. Ist ein Symbol weiß gezeichnet, sind weniger als zehn Matche in die Regression eingegangen.

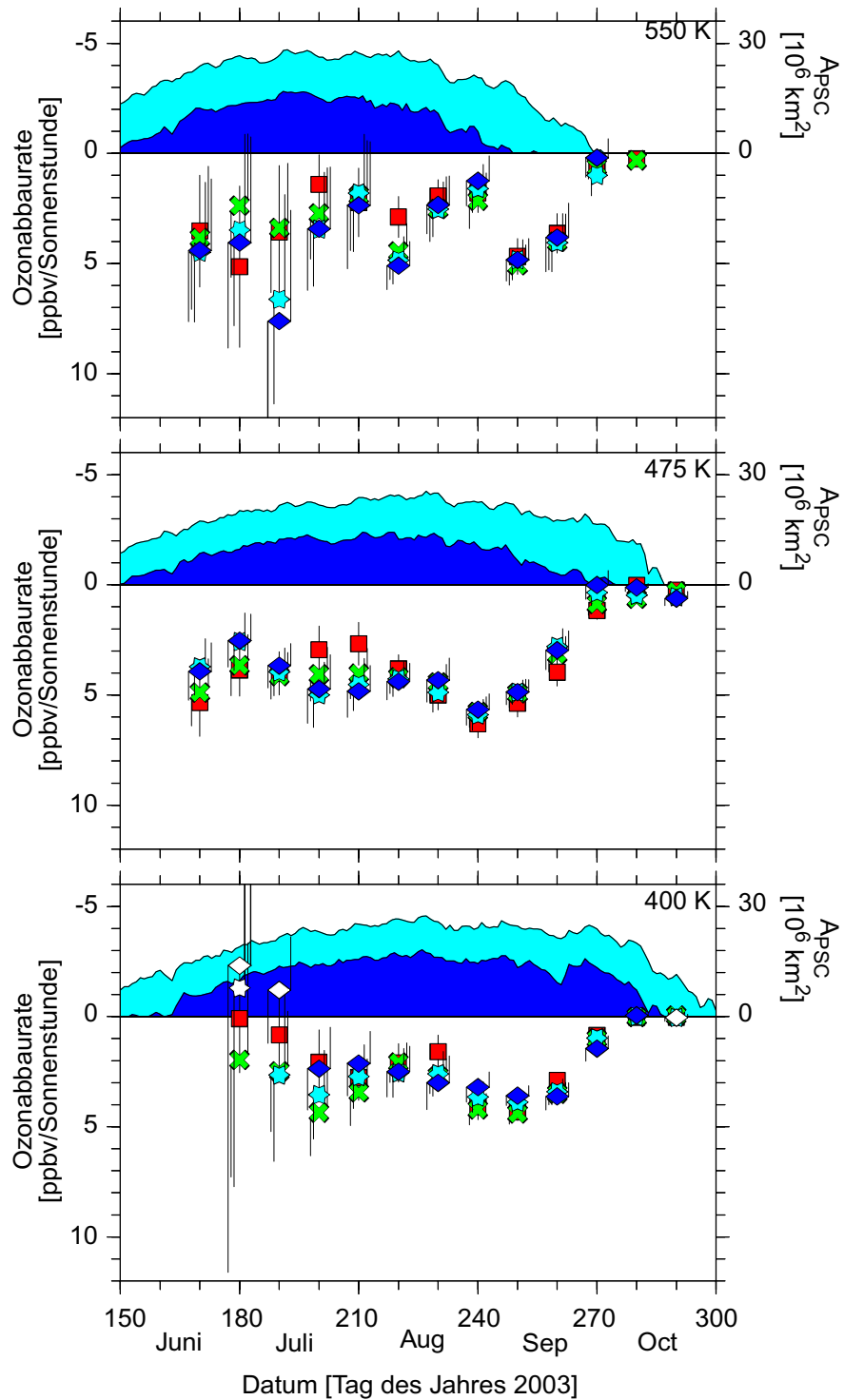


Abbildung 7.16: Abhängigkeit der Ozonabbauraten auf die Einführung eines zweiten Matchradius. Dabei wurde der maximale Vorwärtsmatchradius und der maximale Rückwärtsmatchradius addiert und die Summe beider Radien mit 1000 km (grüne Kreuze), 800 km (hellblaue Sterne) und 700 km (dunkelblaue Rhomben) gesetzt. Die roten Quadrate geben die Standardauswertung wieder. Die Fehlerbalken geben die statistische 1σ Unsicherheit an. Ist ein Symbol weiß gezeichnet, sind weniger als zehn Matche in die Regression eingegangen.

7.2.5 Integrierter Ozonabbau

Die Berechnung des integrierten Ozonabbaus für den antarktischen Winter 2003 erscheint nur bedingt sinnvoll, da im Höhenbereich von 14-21 km das gesamte Ozon im Polarwirbel zerstört wurde, wie in Abbildung 3.9 sichtbar ist. Eine Schwäche der Integration des Ozonabbaus mittels der Matchdaten stellt die ungleichmäßige Beprobung des Wirbels durch die Ozonsonden dar. Da die Ozonabbauraten keine Wirbelmittel darstellen, kann im Prinzip auch kein Aussage über den Ozonabbau im gesamten Polarwirbel getroffen werden. Allerdings kann mit der Integration kontrolliert werden, ob die ermittelten Ozonabbauraten den gefundenen Abbau erklären können. Zur Integration der Ozonabbauraten wird die in Abschnitt 6.2.3 beschriebene Methode verwendet. Das Absinken der Luftmassen wird durch wirbelgemittelte Heizraten berücksichtigt, die auf einer Wirbelgrenze von $36 \text{ s}^{-1} \text{ nPV}$ beruhen. Die Wirbelgrenze, die zur Berechnung der Ozonabbauraten auf den unterschiedlichen Höhen genutzt wurde, weicht davon ab. Das muss bei der Interpretation der Ergebnisse berücksichtigt werden.

Der berechnete Abbau wird dann mit dem Profil des gemittelten Ozons verglichen, das auf Grundlage der gestarteten Ozonsonden in den antarktischen Polarwirbel berechnet wurde.

Abbildung 7.17 zeigt die zeitliche Entwicklung des Ozonabbaus im antarktischen Polarwirbel. In Teilabbildung (a) ist der zeitliche Verlauf des Ozonabbaus in den absinkenden Luftpaketen farbig kodiert. Die gepunkteten Linien geben das mittlere Absinken der Luftpakete im Wirbel

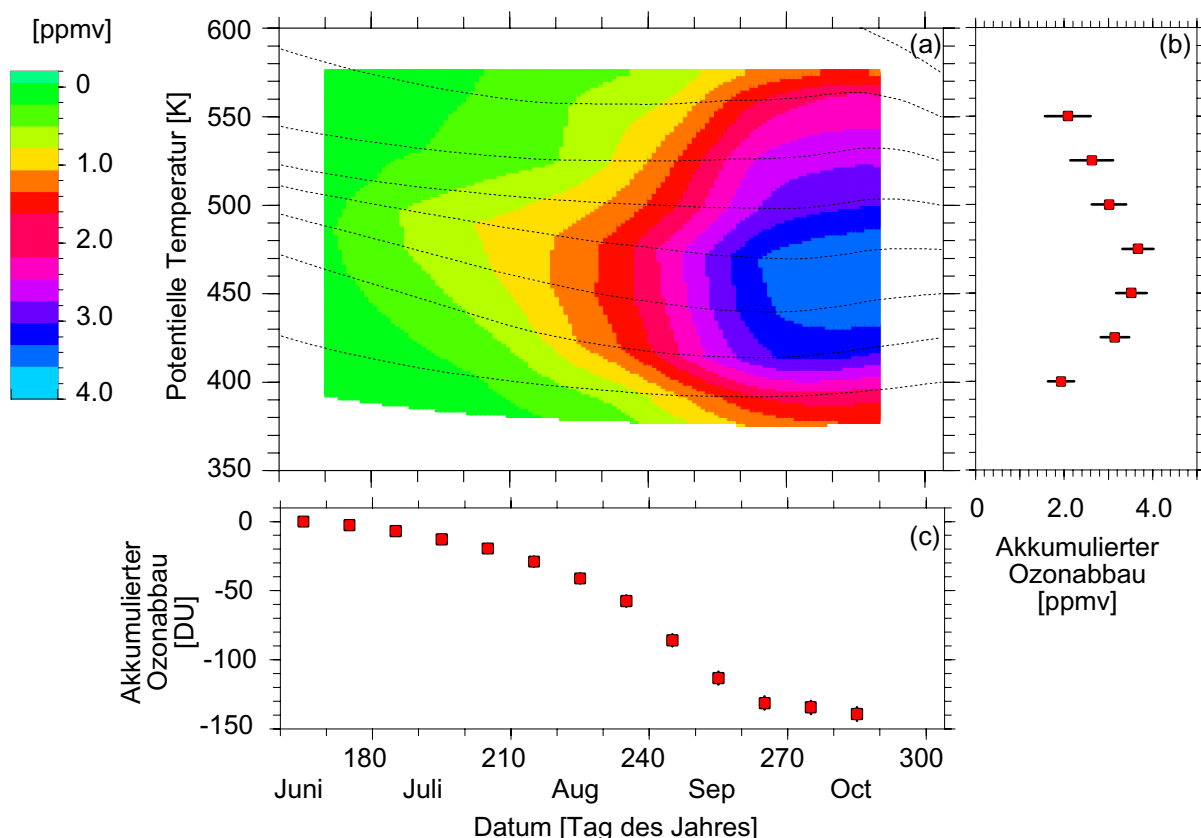


Abbildung 7.17: Teilabbildung (a): Zeitliche Entwicklung des akkumulierten Ozonabbaus in absinkenden Luftpaketen mit den äquivalenten potentiellen Temperaturen $\Theta = 400, 425, 450, 475, 500, 525$ und 550 K . Der integrierte Ozonabbau ist farbig kodiert. Die gepunkteten Linien geben das mittlere diabatische Absinken der Luftpakete im Wirbel wieder. Teilabbildung (b): Profil des akkumulierten Ozonverlusts am 12. Oktober (Tag 285). Teilabbildung (c): Ozonverlust in DU der durch vertikale Integration des akkumulierten Ozonverlusts an den jeweiligen Tagen aus den Daten der Teilabbildung (a) erhalten wurde.

an. Die Luftmassen erreichen am 31. Oktober 2003 die äquivalenten potentiellen Temperaturen von $\Theta = 400, 425, 450, 475, 500, 525$ und 550 K. Das Profil des integrierten Ozonabbaus mit der statistischen 1σ Unsicherheit des 12. Oktobers (Tag 285) ist in Teilabbildung (b) gezeigt.

Am 12. Oktober haben die Luftpakete die Höhe von $\Theta = 394,7, 418,3, 444,4, 472,3, 501,6, 530,7, 562,0$ erreicht. Das Aufsteigen der Luftmassen ab Mitte Oktober kennzeichnet das Einsetzen der Frühjahrserwärmung, die zur langsamen Zirkulationsumstellung führt (siehe Abschnitt 7.1). Da die Abbauraten zu diesem Zeitpunkt auf allen Niveaus um Null schwanken, wird dieser Abbau als Gesamtabbau für den Zeitraum bis zum 31. Oktober 2003 interpretiert. In Teilabbildung (c) ist die Abnahme des Gesamt Ozons in der Säule berechnet, der durch die vertikale Integration der Werte aus Teilabbildung 7.17 (a) am jeweiligen Tag gewonnen wurde. Die vertikale Integration des integrierten Ozonabbaus aus Teilabbildung 7.17 (b) ergibt einen Wert von 137 ± 5 DU am 12. Oktober 2003. Damit liegt der Wert etwa um den Faktor drei höher als im arktischen Winter 2002/2003.

Da bei der Berechnung des akkumulierten Ozonabbaus einige Annahmen gemacht wurden, wurde der Ozonabbau zum Vergleich mit zwei weiteren Ansätzen berechnet. Tabelle 7.4 Spalte 2 zeigt die in Abbildung 7.17 (b) gezeigten Werte. Spalte 3 zeigt den integrierten Ozonabbau, der erhalten wird, wenn bei der Integration das Absinken der Luftmassen nicht berücksichtigt wird. Für den integrierten Ozonabbau in Spalte 4 wurde bei der Berechnung der Ozonabbauraten in ppbv / Tag eine starre Wirbelgrenze von 36 s^{-1} auf allen Höhen verwendet.

Tabelle 7.4: Vergleich des akkumulierten Ozonabbaus [ppmv] für verschiedene Ansätze. In Spalte 1 ist die äquivalente potentielle Temperatur angegeben. Spalte 2 beinhaltet die Daten aus Abbildung 7.17 (b). Spalte 3: integrierter Ozonabbau ohne Berücksichtigung des diabatischen Absinkens der Luftmassen. Spalte 4: Ozonabbau, wenn zur Berechnung der Ozonabbauraten eine starre Wirbelgrenze von 36 s^{-1} verwendet wurde.

Äquivalente potentielle Temperatur [K]	Integrierter Ozonabbau [ppmv]	Integrierter Ozonabbau [ppmv]	Integrierter Ozonabbau [ppmv]
400	$1,9 \pm 0,3$	$2,0 \pm 0,4$	$1,9 \pm 0,3$
425	$3,1 \pm 0,3$	$3,0 \pm 0,4$	$3,1 \pm 0,3$
450	$3,5 \pm 0,3$	$3,3 \pm 0,4$	$3,5 \pm 0,3$
475	$3,7 \pm 0,4$	$3,6 \pm 0,3$	$3,7 \pm 0,4$
500	$3,0 \pm 0,4$	$3,3 \pm 0,4$	$3,1 \pm 0,4$
525	$2,6 \pm 0,5$	$2,7 \pm 0,5$	$2,8 \pm 0,5$
550	$2,1 \pm 0,5$	$2,3 \pm 0,5$	$2,1 \pm 0,5$

Alle Ansätze zeigen eine sehr gute Übereinstimmung des integrierten Ozonabbaus auf den betrachteten Höhen. Die Annahme, dass Ozonabbauraten und wirbelgemittelten Heizraten, die mit unterschiedlichen Wirbelgrenzen berechnet wurden, zusammen verwendet werden können, ist berechtigt. Des Weiteren ist ersichtlich, dass die PV-Grenze keinen wesentlichen Einfluss auf die mit Match in diesem Winter ermittelten Ozonabbau hat, da auch hier der integrierte Abbau zwischen beiden Analysen gut übereinstimmt.

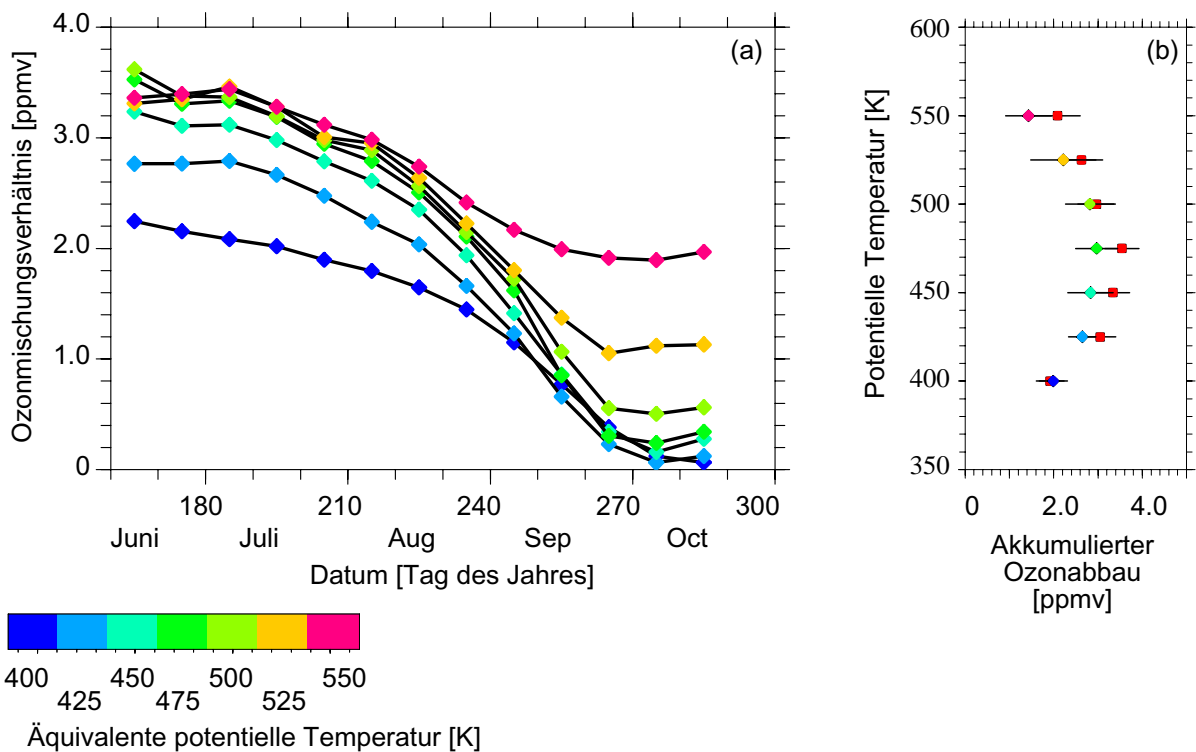


Abbildung 7.18: (a) zeitlicher Verlauf der Ozonmischungsverhältnisse in den verschiedenen Luftmassen, die am 31.10.2003 die angegebene äquivalente Frühjahrstemperatur erreichen. Die einzelnen Höhen sind farbig kodiert. (b) zeigt den Vergleich zwischen der Differenz der wirbelgemittelten Ozonmischungsverhältnisse von Tag 285 und 175 aus Graph (a) und den Matchergebnissen für die entsprechende Höhe. Die Wirbelmittelergebnisse sind als Rhomben dargestellt und die Matchergebnisse als Quadrate.

Aus den Ozonsonden, die im Wirbel während der Matchkampagne gestartet wurden, wurde ein Wirbelmittel auf den äquivalenten potentiellen Temperaturen an den Tagen berechnet, an denen der integrierte Ozonabbau mit der Matchtechnik berechnet wurde. Abbildung 7.18 (a) zeigt den zeitlichen Verlauf des gemittelten Ozonmischungsverhältnisses im antarktischen Polarwirbel. Die Ozonmischungsverhältnisse der äquivalenten potentiellen Temperaturniveaus $\Theta = 400$ bis 475 K sind am Tag 275 komplett auf Null zurückgegangen. Ab $\Theta = 500$ K wird der Abbau schwächer und auf dem $\Theta = 500$ K Niveau wird ca. $1/3$ des Ozons abgebaut. Um den wirbelgemittelten Ozonabbau zu berechnen wird die Differenz der Ozonmischungsverhältnisse zwischen Tag 175 und Tag 285 gebildet. Abbildung 7.18 (b) zeigt den Vergleich des wirbelgemittelten Ozonabbaus mit dem akkumulierten Ozonabbau des Matchansatzes für den entsprechenden Zeitraum. Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung beider Methoden. Dabei ist die Differenz des Wirbelmittels auf den meisten Höhen etwas geringer als die der Matchergebnisse.

Wie bei der Matchmethode muss auch hier berücksichtigt werden, dass es sich bei diesem Wirbelmittel nicht um Wirbelmittel im eigentlichen Sinn handelt. Es sind zwar alle Sonden, die in den Polarwirbel gestartet in die Berechnung eingegangen, allerdings ergibt sich auch hier die Problematik der ungleichmäßigen Beprobung des Wirbels. So müsste für ein korrektes Wirbelmittel eine Wichtung der Sonden innerhalb des PV-Raumes erfolgen. Erst dann kann man von einem eigentlichen Wirbelmittel sprechen. Da bestimmte PV-Bereiche auf den betrachteten Höhenniveaus (siehe Abbildung 7.8) des Polarwirbels allerdings gar nicht beprobt wurden, nützt in diesen Fällen auch eine Wichtung nichts.

Kapitel 8

Multisensor-Matchtechnik

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuer Ansatz zur Bestimmung von Ozonabbauraten, die Multisensor-Matchtechnik entwickelt, die zum ersten Mal auf den antarktischen Winter 2003 angewendet wurde. Im ersten Teil des Kapitels werden die theoretischen Grundlagen für die Multisensor-Matchtechnik gelegt, sowie eine vereinfachte Fehlerrechnung vorgestellt. Danach werden die technischen Änderungen erläutert, die zur Implementierung der Multisensor-Matchtechnik notwendig geworden sind. Im Anschluss werden die Ergebnisse der neuen Technik vorgestellt. Der vierte Abschnitt beschreibt die Anwendung der Matchtechnik auf einen passiven Tracer wie N_2O oder CH_4 .

8.1 Theorie der Multisensor-Matchtechnik

Bisher wurde die Match-Technik zur Berechnung von Ozonabbauraten aus Ozonprofilen genutzt, die von einem einzigen Sensortyp (z.B. Ozonsonden) stammen. Andere Arbeitsgruppen haben diese Technik auf Satelliten angewendet (Sasano et al., 2000; Hoppel et al., 2005). Sollen Ozonprofile von mehr als einem Sensortyp zur Bestimmung einer Abbaurate herangezogen werden, so muss berücksichtigt werden, dass beide Sensoren einen Versatz in ihren Messungen haben können, d.h. würden beide Sensoren dieselbe Luftmasse beproben, gäbe es einen systematischen Unterschied zwischen beiden gemessenen Profilen, der durch die unterschiedlichen Sensoren bedingt ist. Dieser Versatz wird im Folgenden Bias genannt.

Die Berechnung der Ozondifferenz aus zwei Messungen unterschiedlicher Sensoren ohne die Berücksichtigung dieses Bias führt zu einer systematisch fehlerhaften Ozondifferenz. Würden Messungen beider Sensoren gleichermassen als erste und zweite Messung fungieren, sollte dies den systematischen Fehler in der Regression zur Berechnung der Abbaurate ausmitteln. Allerdings wird dies komplexer, wenn man mehr als zwei verschiedene Sensoren einbezieht. Die Bestimmung von Ozonabbauraten aus Datensätzen unterschiedlicher Sensoren stellt deshalb eine Erweiterung der bisherigen Matchtechnik dar.

Es werden drei Datensätze genutzt: Daten des Satellitenexperiments ILAS II (Version 1.4), Daten des Satellitenexperiments POAM III (Version 4.0) und die Ozonsondenmessungen, die während der Matchkampagne in der Antarktis durchgeführt wurden.

Wendet man die Matchtechnik auf die Daten eines Sensors an, so muss für jeden Match bei Annahme einer konstanten Abbaurate eine Grundgleichung des folgenden Typs gelöst werden:

$$d_m = \hat{r} \cdot t_m + \epsilon_m \quad (m = 1, \dots, M_1). \quad (8.1)$$

M_1 = Anzahl der Matche mit ersten und zweiten Messungen, die vom gleichen Sensortyp

- durchgeführt wurden,
- M = Anzahl aller Matche,
- \bar{r} = mittlere Ozonabbaurate,
- d_m = Ozondifferenz des m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$,
- t_m = Sonnenzeit des m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$,
- ϵ_m = Gesamtfehler der Ozondifferenz, $m = 1, \dots, M$.

Die lineare Regression wird bei diesem Ansatz durch Null gezwungen, d.h. es wird nur ein zu optimierender Parameter, die Abbaurate, berücksichtigt.

Werden Daten von zwei verschiedenen Sensoren zur Bestimmung der Abbaurate genutzt, muss Gleichung (8.1) modifiziert werden. Für einen Match zwischen einer Sonde, erste Messung, und ILAS II, zweite Messung, sehen die Grundgleichungen wie folgt aus:

$$d_m = b_{S,I} + \bar{r} \cdot t_m + \epsilon_m, \quad (m = M_1, \dots, M_2). \quad (8.2)$$

$b_{S,I}$ ist der Bias zwischen den Ozonsondenmessungen (S) und den ILAS II-Messungen (I) und entspricht dem Achsenabschnitt einer Regressionsgeraden. Der Achsenabschnitt gibt den Unterschied beider Sensoren an, wenn kein Ozonabbau stattfinden konnte, weil das Zeitintervall Null ist. Da die absoluten Bias gegenüber den wahren Messwerten bei der Matchmethode wegen der Differenzbildung auf der linken Seite von Gleichung (8.1) ohne Belang sind, kann man einen beliebigen Sensor, z.B. die Sonde, als Referenz für die relativen Bias der anderen Sensoren nehmen. Werden die Sensoren getauscht, ist also z.B. die ILAS II-Messung die erste Messung und die Sondenmessung die zweite, so wechselt der Bias wegen $b_{I,S} = -b_{S,I}$ sein Vorzeichen:

$$d_m = -b_{S,I} + \bar{r} \cdot t_m + \epsilon_m \quad (m = M_{2+1}, \dots, M_3). \quad (8.3)$$

Es ergeben sich entsprechende Gleichungen für die Sonden-POAM III Matche:

$$d_m = b_{S,P} + \bar{r} \cdot t_m + \epsilon_m \quad (m = M_{3+1}, \dots, M_4), \quad (8.4)$$

$$d_m = -b_{S,P} + \bar{r} \cdot t_m + \epsilon_m \quad (m = M_{4+1}, \dots, M_5). \quad (8.5)$$

Da sich der Bias der jeweiligen Satellitenmessungen aus dem Vergleich zu den Sondenmessungen ergibt, ist der dritte existierende Bias, zwischen ILAS II und POAM III ($b_{I,P}$ bzw. $b_{P,I}$), nicht von den vorherigen Bias unabhängig und kann wie folgt beschrieben werden:

$$b_{I,P} = -b_{P,I} = b_{S,P} - b_{S,I}. \quad (8.6)$$

So können die Gleichungen für Matche zwischen den beiden Satelliten in der folgenden Form geschrieben werden:

$$d_m = b_{S,P} - b_{S,I} + \bar{r} \cdot t_m + \epsilon_m \quad (m = M_{5+1}, \dots, M_6), \quad (8.7)$$

$$d_m = -b_{S,P} + b_{S,I} + \bar{r} \cdot t_m + \epsilon_m \quad (m = M_{6+1}, \dots, M). \quad (8.8)$$

Bestand das zu lösende Gleichungssystem vorher aus den Gleichungen (8.1), so besteht das Gleichungssystem für den multivariaten Sensormatch aus allen oben gezeigten Grundgleichungen, (8.1) bis (8.8). Durch die Benutzung der drei Datensätze steigt die Anzahl der gefundenen Matche stark an. Gleichzeitig können neben der Steigung bzw. Ozonabbaurate \hat{r} , auch der Bias Sonde-ILAS II, $b_{S,I}$, und der Bias Sonde-POAM III, $b_{S,P}$, bestimmt bzw. abgeschätzt wer-

den. Das System stellt aber immer noch ein überbestimmtes, mathematisches Problem dar. Zur gleichzeitigen Bestimmung der Steigung und der Bias ist die Lösung einer multivariaten Regression nötig geworden.

8.1.1 Anwendung der multivariaten Regression zur Bestimmung von Ozonabbauraten verschiedener Sensoren

Folgende Variablen werden im Anschluss genutzt:

- K = Anzahl der Parameter die optimiert werden sollen,
- N = Anzahl der Ozonmessungen,
- X_k = Basisfunktion des zu optimierenden Parameters, $k = 1, \dots, K$,
- v_k = die zu optimierenden Parameter (Steigung und Bias),
 $k = 1, \dots, K$,
- c_n = Ozonmischungsverhältnis der n -ten Messung, $n = 1, \dots, N$,
- $k_1(m)$ = Index der ersten Messung eines m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$,
 $k_1(m)$ selber ist eine Zahl von $1, \dots, N$,
- $k_2(m)$ = Index der zweiten Messung eines m -ten Matches, $m = 1, \dots, M$,
 $k_2(m)$ selber ist eine Zahl von $1, \dots, N$.

Für die weitere Abhandlung werden folgende Vektoren definiert:

$\mathbf{d} = (d_1, \dots, d_M)^T$, $\mathbf{v} = (v_1, \dots, v_K)^T$. Dabei steht T für den transponierten Vektor.

Nach dem multivariaten Ansatz ist das Model wie folgt beschrieben:

$$d(t) = v_1 \cdot X_1(t) + v_2 \cdot X_2(t) + v_3 \cdot X_3(t). \quad (8.9)$$

Hier gilt $v_1 = b_{S,I}$, $v_2 = b_{S,P}$, $v_3 = \hat{r}$. Die ersten beiden Terme beschreiben die Bias. $X_3(t)$ ist gleich der Sonnenzeit t .

$$X_1(t_m) = \begin{cases} 1 & \text{wenn es sich bei dem } m\text{-ten Match um einen Sonde-ILAS II} \\ & \text{Match oder POAM III-ILAS II Match handelt,} \\ -1 & \text{wenn es sich um einen ILAS II-Sonde Match oder} \\ & \text{ILAS II-POAM III Match handelt,} \\ 0 & \text{wenn ILAS II an den Messungen nicht beteiligt ist} \\ & \text{oder beide Messungen von ILAS II stammen.} \end{cases}$$

$$X_2(t_m) = \begin{cases} 1 & \text{wenn es sich bei dem } m\text{-ten Match um einen Sonde-POAM III} \\ & \text{Match oder ILAS II-POAM III Match handelt,} \\ -1 & \text{wenn es sich um einen POAM III-Sonde Match oder} \\ & \text{POAM III-ILAS II Match handelt,} \\ 0 & \text{wenn POAM III an der Messung nicht beteiligt ist} \\ & \text{oder beide Messungen von POAM III stammen.} \end{cases}$$

Es wird die $M \times K$ große Matrix \mathbf{A} mit den Elementen a_{mk} wie folgt definiert:

$$a_{mk} = X_k(t_m). \quad (8.10)$$

Für die lineare Regression muss die folgende Kostenfunktion minimiert werden:

$$\chi^2 = \sum_{m=1}^M \left(d_m - \sum_{k=1}^K v_k \cdot X_k(t_m) \right)^2 = (\mathbf{d} - \mathbf{A} \cdot \mathbf{v})^T (\mathbf{d} - \mathbf{A} \cdot \mathbf{v}). \quad (8.11)$$

Die Minimierung der Kostenfunktion χ^2 führt zur folgenden Gleichung für \mathbf{v}

$$(\mathbf{A}^T \cdot \mathbf{A}) \cdot \mathbf{v} = \mathbf{A}^T \cdot \mathbf{d}. \quad (8.12)$$

Falls $(\mathbf{A}^T \cdot \mathbf{A})$ invertierbar ist, kann man die Gleichung eindeutig lösen. Mit den Definitionen

$$\mathbf{Q} = (\mathbf{A}^T \cdot \mathbf{A})^{-1},$$

$$\boldsymbol{\beta} = \mathbf{A}^T \cdot \mathbf{d},$$

ergibt sich für einen einzelnen zu fittenden Parameter v_j :

$$v_j = \sum_{k=1}^K Q_{jk} \cdot \beta_k = \sum_{k=1}^K Q_{jk} \sum_{m=1}^M d_m \cdot X_k(t_m), \quad j = 1, \dots, 3. \quad (8.13)$$

8.1.2 Fehlerrechnung für die Anwendung der multivariaten Regressionsanalyse

Gerade im Fall des multivariaten Ansatzes ist die Standardfehlerrechnung zur multivariaten Regression, die die Unabhängigkeit der Fehler annimmt, nicht nutzbar. Wie bereits im Abschnitt 3.7.2 vorgestellt, haben die hier genutzten Satelliten bis zu 14 Messungen pro Tag auf nahezu derselben Breite gemacht, was zu einem starken Anstieg der Anzahl der Matche insbesondere in hohen Breiten führt. Eine einzelne Messung ist so an sehr viel mehr Matchen beteiligt als beim Ozonsondenmatchansatz, und die Abhängigkeit der Matchfehler kann deshalb nicht vernachlässigt werden. Eine korrekte Fehlerrechnung für die multivariate Regression, die auch die unterschiedlichen Fehler von Satelliten- und Ozonsondenmessungen berücksichtigt, ist sehr umfangreich und wird zurzeit in der Arbeitsgruppe entwickelt. Hier soll eine vereinfachte Fehlerrechnung hergeleitet werden, die eine obere Abschätzung des Fehlers zulässt.

Um die Fehlerrechnung auf unabhängige Fehlerterme zurückzuführen werden die Ozondifferezenzen d_m in die beiden Einzelmessungen aufgeteilt, $d_m = c_{k_2(m)} - c_{k_1(m)}$.

Es wird angenommen, dass die Fehler der einzelnen Messungen unabhängig und ihre Standardabweichung gleich sind. Unter der Benutzung von Gleichung (8.13) ergibt sich damit:

$$v_j = \sum_{k=1}^K Q_{jk} \sum_{m=1}^M \left(c_{k_2(m)} \cdot X_k(t_m) - c_{k_1(m)} \cdot X_k(t_m) \right). \quad (8.14)$$

Nun werden die Summen so umsortiert, dass diejenigen Matche, an denen eine Messung n als erste Messung beteiligt ist, und solche Matche, an denen eine Messung n als zweite Messung beteiligt ist, gesondert gruppiert werden:

$$v_j = \sum_{k=1}^K Q_{jk} \left[\sum_{n=1}^N \left(\left(\sum_{i=1}^{L_{k_2(n)}} X_k(t_i) \right) - \left(\sum_{i=1}^{L_{k_1(n)}} X_k(t_i) \right) \right) \cdot c_n \right]. \quad (8.15)$$

wobei

$L_{k_1(n)}$ die Anzahl der Matche ist, an denen die n -te Sonde als 1. Sonde beteiligt und $L_{k_2(n)}$ die Anzahl der Matche, an denen die n -te Sonde als 2. Sonde beteiligt ist.

Wendet man auf Gleichung (8.15) das Gauss'sche Fehlerfortpflanzungsgesetz an, ergibt sich mit der Varianz des Fehlers der Einzelmessung σ_δ^2 für den Schätzer s_{v_j} der Standardabweichung des zu optimierenden Parameters \hat{r}

$$s_{v_j}^2 = \sum_{n=1}^N \left(\sum_{k=1}^K Q_{jk} \left(\sum_{i=1}^{L_{k_2(n)}} X_k(t_i) - \sum_{i=1}^{L_{k_1(n)}} X_k(t_i) \right) \right)^2 \cdot \sigma_\delta^2. \quad (8.16)$$

Die Quadrierung der Klammer und Umstellung der Summen ergibt:

$$s_{v_j}^2 = \sum_{n=1}^N \left(\sum_{k=1}^K \sum_{l=1}^K Q_{jk} \cdot Q_{jl} \left(\sum_{i=1}^{L_{k_2(n)}} X_k(t_i) - \sum_{i=1}^{L_{k_1(n)}} X_k(t_i) \right) \cdot \left(\sum_{i=1}^{L_{k_2(n)}} X_l(t_i) - \sum_{i=1}^{L_{k_1(n)}} X_l(t_i) \right) \right) \cdot \sigma_\delta^2 \quad (8.17)$$

Im Folgenden wird angenommen, dass der Fehler eines Matches sich alleine aus den Fehlern der Einzelmessung zusammensetzt. Dann ist die Varianz der Fehler der Einzelmessung σ_δ^2 mit der Varianz des Fehlers eines Matches σ_ϵ^2 wie folgt verknüpft:

$$\sigma_\delta^2 = \frac{\sigma_\epsilon^2}{2}. \quad (8.18)$$

Diese Annahme ist eine Vereinfachung, da in den Fehler eines Matches σ_ϵ auch andere Fehlerquellen, wie der Trajektorienfehler, eingehen. Nimmt man an, dass die Fehler der Einzelmessungen gleich groß sind, kann man diese also aus dem Fehler der Matche bestimmen. Da dieser Fehler der unbekannt ist, wird er aus der Streuung der Daten um die Regressionsgerade $\frac{\chi^2}{(M-K)}$ Gleichung (8.11), abgeschätzt, wobei $M-K$ für die Anzahl der Freiheitsgrade steht.

So ergibt sich der Schätzer der Varianz des zu optimierenden Parameters zu:

$$s_{(v_j)}^2 = \frac{\chi^2}{2(M-K)} \cdot \sum_{n=1}^N \left(\sum_{k=1}^K \sum_{l=1}^K Q_{jk} \cdot Q_{jl} \left(\sum_{i=1}^{L_{k_2(n)}} X_k(t_i) - \sum_{i=1}^{L_{k_1(n)}} X_k(t_i) \right) \cdot \left(\sum_{i=1}^{L_{k_2(n)}} X_l(t_i) - \sum_{i=1}^{L_{k_1(n)}} X_l(t_i) \right) \right) \quad (8.19)$$

In Gleichung (8.19) wird der Fehler der Abbaurate, wie bereits erwähnt, allein auf die Messfehler der Sensoren zurückgeführt und der gesamt Fehler eines Matches als abhängig betrachtet. Dies führt in der Regel zur Vergrößerung des Fehlers. Im Falle des Ozonsondenmatch-Ansatzes machen die Messfehler der Sensoren nur ca. 2/3 des Gesamtfehlers des Matches aus. Es gibt noch den nicht abhängigen Fehler eines Matches, den Nettomatchfehler Δ_m . Berechnet

man diesen unabhängigen Anteil des Matchfehlers korrekt führt dies zu einer Verkleinerung des Matchfehlers. Daher ist der hier hergeleitete Fehler ein oberer Grenzwert für den tatsächlichen Fehler der Abbaurate. Außerdem sollte in der korrekten Fehlerrechnung die Abhängigkeit der Matche ebenfalls in den Freiheitsgraden $M-K$ der Regression in Gleichung (8.19) berücksichtigt werden. Ein genereller Schwachpunkt der hier vorgestellten Fehlerrechnung liegt darin, dass angenommen wird, dass die Fehler der Sonden- und Satellitenmessungen gleich groß sind. Dies ist nicht der Fall, da die Satellitenmessungen mit viel mehr Unsicherheiten belastet sind als die Sondenmessungen.

Eine zukünftige Fehlerrechnung sollte alle oben genannten Punkte berücksichtigen.

8.2 Technische Aspekte

Für die Nutzung von Satellitendaten mussten neben der oben beschriebenen Routine zur Berechnung des Bias und der Ozonabbauraten einige technische Neuerungen in die Computerroutinen implementiert werden. Das betrifft in erster Linie die Berechnung der Schwarmtrajektorien und die Qualitätskriterien, die nun auf die gröbere vertikale Auflösung der Satellitenprofile eingestellt werden müssen. Wie die Ozonsondendaten auch, wurden die Satellitendaten in den benötigten Höhenniveaus interpoliert. Insgesamt standen 1824 ILAS II, 1107 POAM III und 419 Ozonsondenmessungen für den antarktischen Winter 2003 zur Verfügung.

Bei den Messungen von ILAS II handelt es sich um Daten, die zur Validierung freigegeben worden sind und unter anderem auf ihre Qualität hin untersucht werden sollen. Daher ist die Ermittlung des Bias nicht nur für die korrekte wissenschaftliche Arbeit wichtig, sondern dient auch der Verbesserung zukünftiger Daten-Versionen.

8.2.1 Berechnung der Schwarmtrajektorien:

Aufgrund der Sichtachse und der Optik der Satelliten ist die vertikale Auflösung von 1 km und die Breite des beprobten Luftpaketes von 30 km vorgegeben. Aus der vertikalen Auflösung ergibt sich die Länge des Luftpaketes, über das der Ozonwert gemessen wird, zu 228 km. Da der Erdradius, der in die Berechnung der Länge des Luftpaketes eingeht, mit 6378 km vergleichsweise groß ist zur Dicke der Atmosphäre, bleibt die Länge des Luftpaketes für den in Match betrachteten Höhenbereich von $\Theta = 400-600$ K annähernd gleich.

Gemäß dieser Geometrie wurden die Schwarmtrajektorien gerechnet. Die zentrale Trajektorie startet am Tangentialpunkt der Satellitenmessung. Zur Berechnung der Schwarmtrajektorien wird die zu den Messungen angegebene Sichtachse verwendet. Diese augenblickliche Sichtachse des Satelliten entspricht dem Azimut, d.h. dem Winkel, in dem man auch auf der Erdoberfläche die Sonne sieht, und ist damit von der Tageszeit und stark vom Breitengrad abhängig.

Wie auch beim Ozonsondenmatch wurden jeweils sechs Schwarmtrajektorien gerechnet. Zwei Trajektorien starten oberhalb und zwei Trajektorien unterhalb des zentralen Niveaus. Dazu wurden die Startpunkte der Trajektorien jeweils 100 km in Richtung bzw. entgegen der Sichtachse berechnet. Auf dem zentralen Höhenniveau werden zwei Trajektorien im Abstand von 100 km im 90° Winkel zur Sichtachse berechnet. Da die Matchauswertung als vertikale Koordinate die potentielle Temperatur benutzt, wurde mit Hilfe von Tabelle 8.1 die vertikale Auflösung von 1 km in potentielle Temperatur umgerechnet. Tabelle 8.1 ist ein Ausschnitt aus Tabelle 2.2. So entsprechen am Tag 165 $\Delta z = 500$ m ca. $\Delta\Theta = 10$ K potentieller Temperatur im

Bereich um das $\Theta = 475$ K Niveau, so dass als unteres Niveau das $\Theta = 465$ K und als oberes Niveau $\Theta = 485$ K zur Berechnung der Schwarmtrajektorien genutzt wurde. Da die isentropen Flächen bis zum Tag 285 leicht zusammensinken, wird bis dahin das untere Niveau auf $\Theta = 460$ abgesenkt und das obere Niveau auf $\Theta = 490$ erhöht.

Für die Ozonsonden wurden dieselben Trajektorien wie für den Sondenmatchansatz genutzt.

Tabelle 8.1: Zuordnung der geometrischen Höhe zur potentiellen Temperatur an verschiedenen Tagen im antarktischen Polarwirbel 2003.

Datum	460 K	465 K	475 K	485 K	490 K
165	$19,1 \pm 0,4$	$19,4 \pm 0,4$	$20,0 \pm 0,3$	$20,4 \pm 0,2$	$20,7 \pm 0,2$
195	$19,5 \pm 0,4$	$19,7 \pm 0,5$	$20,1 \pm 0,4$	$20,6 \pm 0,4$	$20,8 \pm 0,4$
225	$19,4 \pm 0,4$	$19,6 \pm 0,4$	$20,0 \pm 0,3$	$20,4 \pm 0,4$	$20,6 \pm 0,4$
255	$18,9 \pm 0,4$	$19,1 \pm 0,5$	$19,5 \pm 0,5$	$20,0 \pm 0,5$	$20,1 \pm 0,5$
285	$18,4 \pm 0,9$	$18,6 \pm 0,9$	$19,0 \pm 0,9$	$19,3 \pm 0,9$	$19,5 \pm 0,9$

8.2.2 Qualitätskriterien

Die Auswahlkriterien lassen sich in zwei verschiedene Bereiche unterteilen, die zum einen die Trajektorie und zum anderen die beiden Ozonmessungen betreffen. Für reine Ozonsondenmatche bleibt der Filtermechanismus derselbe wie in Abschnitt 4.2.2 erläutert. Für Matche, an denen Satellitenmessungen beteiligt sind, werden die Kriterien bezüglich der Trajektorie analog zum Ozonsondenmatch abgefragt. Für die Satellitenprofile wurde das Gradientenkriterium des Ozonmischungsverhältnisses nicht angewendet, da die Daten nicht in entsprechender vertikaler Auflösung zur Verfügung stehen. Allerdings wurde der Gradient des Profils in ppbv / K für jede interpolierte Höhe aus den beiden umgebenden Niveaus berechnet. Übersteigt der Gradient 50 ppbv/K auf Höhe des Matches wird die Messung aussortiert. Darüber hinaus wurden die Entfernung zum nächsten gemessenen Ozonmischungsverhältnis sowie die Größe von Lücken im Profil nicht abgefragt, da in beiden Fällen die vertikale Auflösung der Satellitenspektren größer als die Schwellenwerte der Kriterien ist.

Die Spurengasmessungen der Satelliten werden mit Fehler angegeben. Dieser Fehler wurde ebenfalls abgefragt. Der maximal zulässige Fehler des Ozonmischungsverhältnisses wurde auf 350 ppbv begrenzt.

8.2.3 Begrenzung der Selbstmatche

Da von einem Satelliten bis zu 14 Messungen pro Tag entlang eines Breitenkreises im Abstand von 25° Länge gemacht werden, werden die Okkultationspunkte zum Südpol hin immer dichter. Abbildung 8.1 zeigt die geographische Breite der Sonden-, ILAS II- und POAM III-Messungen. Während am Äquator 25° geographische Länge 2781 km entsprechen, sind es am Umkehrpunkt der Satelliten, der bei $\sim 88^\circ$ S liegt, nur noch ~ 100 km. Damit liegt automatisch die vorherige Messung im Matchradius der folgenden Messung. Dies führt zu einem starken Anstieg der Matche in sehr hohen Breiten, die aber für die Bestimmung des Ozonabbaus irrelevant sind. Daher wurden alle "Selbstmatche", also Matche die aus Messungen eines Sensors bestehen, unterbunden, wenn der Zeitraum zwischen den Messungen weniger als 48 Stunden betrug.

Dies hat vor allem einen technischen Hintergrund, da sonst das Datenaufkommen für ein “normales” Arbeiten mit den Matchlisten nicht mehr möglich ist. Während die Matchlisten aller betrachteten Höhengniveaus für den Sondenmatch eine Größe von 100 MB haben, umfasst die Datei für ein Höhengniveau (zentrales Niveau ± 10 K) für die Multisensor-Matchtechnik ohne Selbstmatche schon ca. 1 GB.

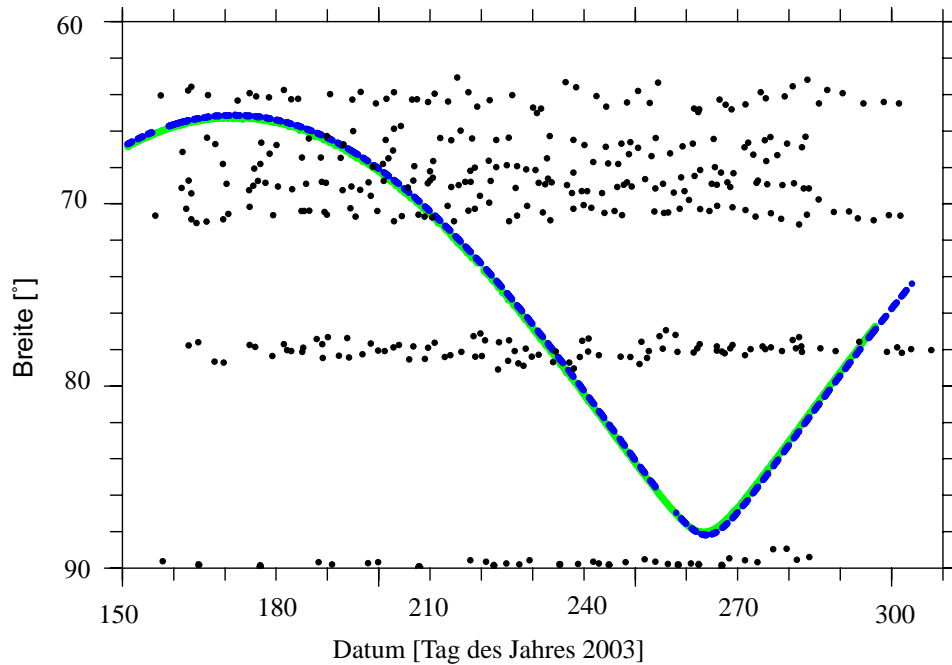


Abbildung 8.1: Breitengradabdeckung der verwendeten Messdaten im antarktischen Winter 2003. Die schwarzen Punkte geben die Breitengrade der gestarteten Ozonsondenmessungen wieder, die blauen Punkte die der POAM III- und die grüne Kurve die der ILAS II-Messungen.

8.3 Ergebnisse der Multisensor-Matchtechnik

In diesem Abschnitt werden die Ozonabbauraten und die Bias präsentiert, die mit der neuen Multisensor-Matchtechnik bestimmt wurden.

8.3.1 Ozonabbauraten

Um einen Eindruck von den Satellitendaten im Vergleich zu den Ozonsondendaten zu bekommen, sind die gemessenen Ozonmischungsverhältnisse der Ozonsonden, der ILAS II- und der POAM III-Messungen auf dem $\Theta = 475$ K Niveau in Abbildung 8.2 dargestellt.

Die gemessenen Mischungsverhältnisse der Satelliten zeigen für den ganzen Winter eine gute Übereinstimmung untereinander. Diese ergibt sich auch mit den Ozonsondendaten bis zum Tag 210. Danach nehmen die gemessenen Ozonmischungsverhältnisse der Ozonsonden früher als die gemessenen Mischungsverhältnisse der Satelliten ab. Zu diesem Zeitpunkt messen die Satelliten jenseits von 72° S, während die meisten Ozonsonden weiter nördlich gestartet wurden, wie in Abbildung 8.1 zu sehen ist. Durch das Sonnenlicht wurde im äußeren Teil des Wirbels bereits eine starke Aktivierung des Chlors erreicht, so dass die starke Ozonerstörung im äußeren Teil des Wirbels beginnen konnte, was von den Ozonsonden dokumentiert wird. Da die Satelliten aber im Inneren des Wirbels messen, der bis dahin wenig Licht erfahren hat, ist die Ozonerstörung in diesem Bereich noch nicht weit fortgeschritten. Um den Tag 270 herum detektieren alle Sensoren eine komplette Zerstörung des Ozons. Danach zeigt sich ein leichter Anstieg im Ozon auf dem $\Theta = 475$ K Niveau. Nachdem das Ozon zerstört wurde gewinnt die Reaktion Cl mit CH_4 unter Bildung von HCl an Bedeutung, und die Chloraktivierung nimmt ab. Daher ist der Anstieg im Ozon nach dem Tag 270 ist durch das Herabsinken ozonreicherer Luft aus größeren Höhen zu erklären (siehe Abbildung 8.2), das wegen der abnehmender Chloraktivierung nicht mehr vollständig zerstört wird. Die hohen Ozonmischungsverhältnisse, die zwischen dem Tag 270 und 300 von einigen Sonden detektiert wurden (siehe Abbildung 8.2), stammen von Ozonsondierungen der Stationen Dumont d'Urville und Marambio, die aufgrund von Bewegungen des Polarwirbels Profile außerhalb des Wirbels aufgenommen haben.

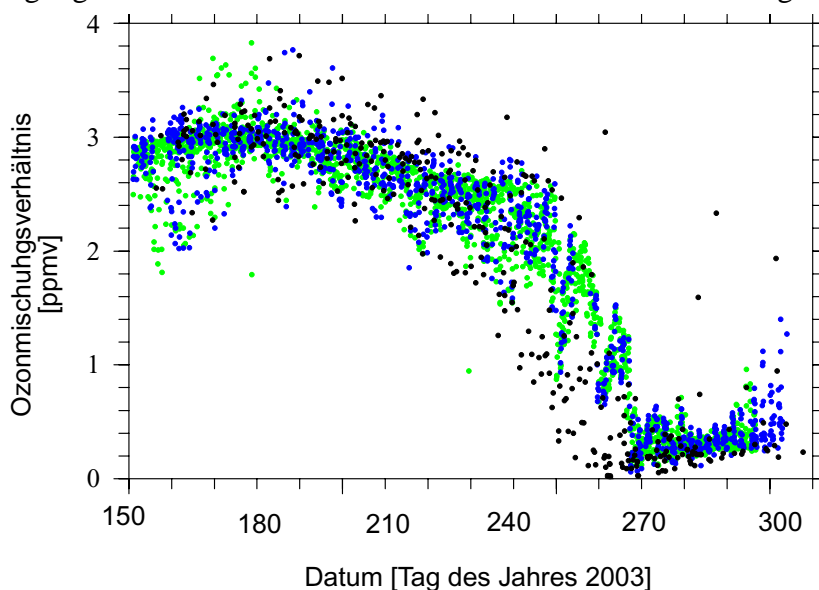


Abbildung 8.2: Ozon-Mischungsverhältnisse auf dem $\Theta = 475$ K Niveau aus den Ozonsondenmessungen (schwarze Punkte) aus den ILAS II Messungen (grüne Punkte) und den POAM III Messungen (blaue Punkte).

Eine dreidimensionale Regression ist auf einer Papieroberfläche nicht darstellbar. Daher werden alle wichtigen Eigenschaften der dreidimensionalen Regression in Abbildung 8.3 zur Veranschaulichung in einzelnen Graphen dargestellt. Abbildung (a) zeigt den zeitlichen Verlauf der Ozonabbaurate auf dem $\Theta = 475$ K Niveau mit der statistischen 1σ Unsicherheit. Wie beim Ozonsondenmatch wird über einen Höhenbereich von ± 10 K und ein Zeitintervall von ± 10 Tagen gemittelt. Alle gezeigten Graphen beziehen sich hier auf die grau unterlegte Abbaurate am Tag 260. In Abbildung (b) sind die Selbstmatche gezeigt, d.h. die Matche, bei denen nur ein Sensor beteiligt war und so kein Bias bestimmt werden musste. Auffällig ist das Ungleichgewicht zwischen der Anzahl der Ozonsondenmatche und den Selbstmatchen der Satellitensensoren. Durch den Ausschluss von Selbstmatchen innerhalb der ersten 48 Stunden nach der jeweiligen Messung entsteht in Abbildung (b) eine Lücke im Bereich kleiner Sonnenstunden. Zum Zeitpunkt des Tages 260 liegt die mittlere Sonnenscheindauer einer Trajektorie zwischen 60-70%, siehe Abbildung 7.9, so dass der sonnenbeschienene Anteil einer Trajektorie von 50 Stunden im Mittel 30 Stunden beträgt. So ergeben sich Matche die mindestens eine Sonnenscheindauer von 30 Stunden haben. Die Abbildungen (c), (d) und (e) zeigen den Teil der Regression für die Gleichungen (8.2) bis (8.8), also die gemischten Matche zwischen Sonden und Satelliten bzw. beiden Satelliten. Um den jeweiligen Bias mit einem kleineren Fehler zu bestimmen wurde die folgende Anordnung der Punkte gewählt: Gemäß Gleichung (8.6) ist der Bias der Matche vom Typ Sensor I-Sensor II gleich dem negativen Bias der Matche vom Typ Sensor II-Sensor I. Deshalb wurde die Sonnenzeit und die Ozondifferenz der Matche vom Typ ILAS II-Sonde, POAM III-Sonde und POAM 3-ILAS II mit -1 multipliziert. So finden sich nun in einem Graphen zwei unterschiedliche Typen von Matchen wieder, die in der vorliegenden Anordnung denselben Bias besitzen. Die Regression ist nun entlang einer größeren Punktwolke definiert, was zu einem kleineren Fehler der zu optimierenden Parameter führt. Die Zahlen, die in Klammern hinter der Abbaurate bzw. den Bias stehen, sind die Faktoren, um die sich der Fehler gegenüber einer Fehlerrechnung vergrößert, die die Abhängigkeit der Matche ignoriert. Im gezeigten Beispiel vergrößert sich der Fehler der Ozonabbaurate um den Faktor 5,2, was die Wichtigkeit der Anpassung der Fehlerrechnung unterstreicht.

Die Anzahl der jeweiligen Messungen schlägt sich in der Anzahl der gefundenen Matche wieder. So gibt es vergleichsweise wenig Sonden-Satelliten bzw. Satelliten-Sonden Matche, aber eine sehr große Anzahl an Satelliten-Satelliten-Matchen. In den Abbildungen 8.3 (c), (d) und (e) sind einige wenige Punkte schwarz eingezeichnet. Bei diesen Matchen war schon bei der ersten Messung weniger als 50 ppbv Ozon in der betrachteten Höhengschicht vorhanden. Daher kann entlang dieser Trajektorien kein nennenswerter Ozonabbau mehr stattfinden. Als statistischer Effekt tritt dann eine leichte scheinbare Ozonproduktion auf, da die Verteilung der Mischungsverhältnisse nun einseitig geworden ist.

Neben den Ozonabbauraten, die mit dem multivariaten Ansatz erstellt werden, ist auch der Selbstmatch der einzelnen Satelliten und Ozonsonden möglich. Im Falle der Ozonsonden erhält man die gleichen Ergebnisse, wie in Kapitel 7 dargestellt. Geringfügige Änderungen treten auf, da auch bei den Sonden keine Selbstmatche zugelassen werden, d.h. eine Station darf innerhalb von 48 h ein Luftpaket nicht zweimal beproben. Dies spielt aber nur im Falle von Matchen an der Station Amundsen-Scott (SP) am geographischen Südpol eine Rolle. Die Luftmassen im Wirbelzentrum bewegen sich vergleichsweise langsam und zirkulieren oft für längere Zeit über der Station.

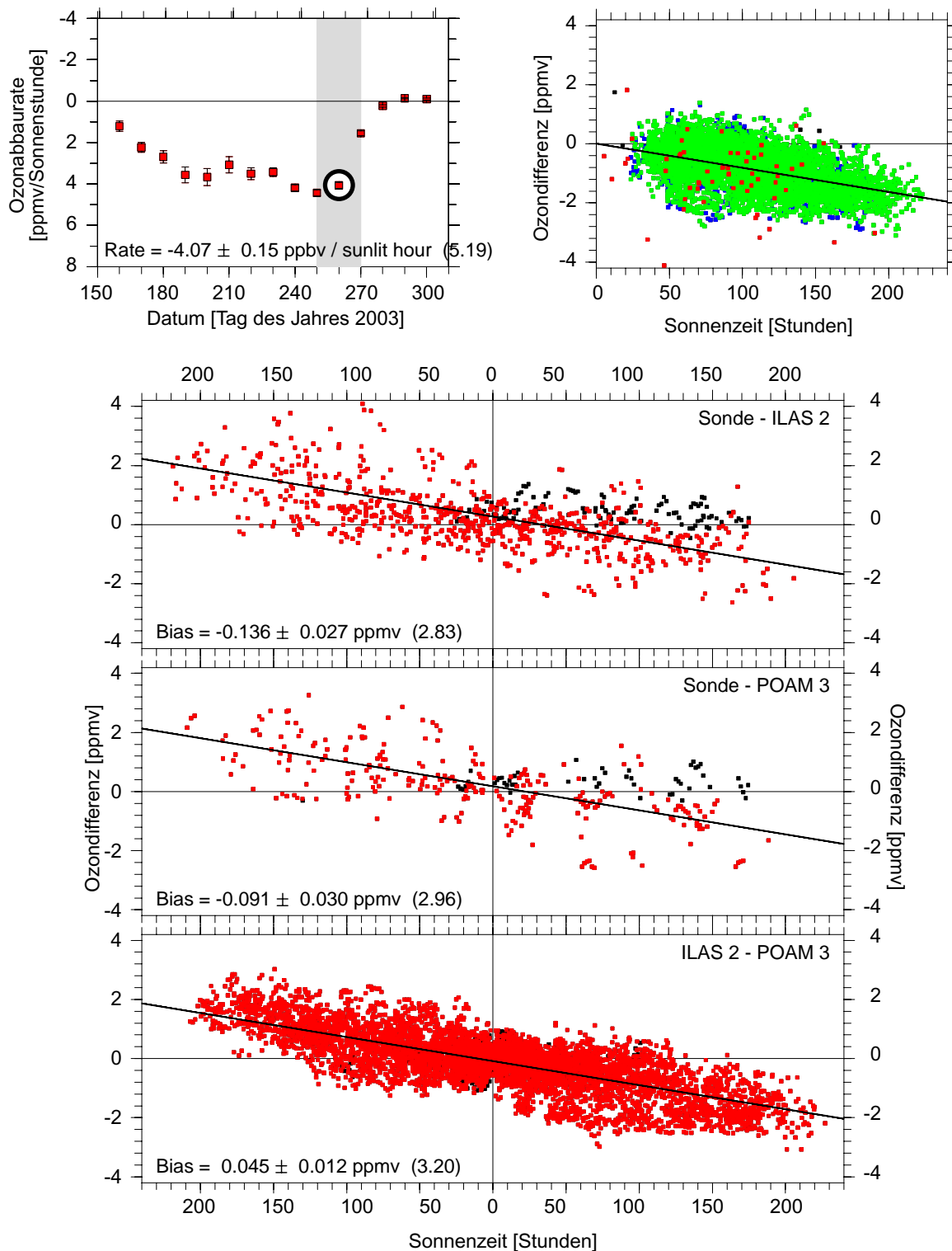


Abbildung 8.3: Beispiel von Ozonabbauraten mit dem Multisensor-Matchansatz. In Abbildung (a) sind die Abbauraten in ppbv / Sonnenstunde gezeigt. Im grau schraffierten Bereich ist mit einem Kreis die Ozonabbaurate gezeigt, die zu den anderen Abbildungen gehört. Abbildung (b) zeigt die Ergebnisse der Selbstmatchansätze. Die roten Punkte geben die Sonden-Sonden Matche wieder, die grünen Punkte geben die ILAS II-ILAS II Matche wieder und zu unterst liegen die POAM III-POAM III Matche, die fast komplett durch die ILAS II-ILAS II Datenpunkte überdeckt werden. In den Abbildungen (c), (d), (e) sind die Anteile der Regression der gemischten Matche angegeben. Ist ein Match schwarz gefärbt, so ergab die erste Messung ein Ozonmischungsverhältnis von weniger als 0,05 ppmv.

In Abbildung 8.4 sind die Ergebnisse der Selbstmatchansätze im Vergleich zum Multisensor-Matchansatz gezeigt. Während die maximale Anzahl an Matches, die in die Regression einer Abbaurates eingehen, im Ozonsonden-Matchansatz bei 130 liegt, sind es im multivariaten Fall am Tage 250 über 10000. Die Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde des Multisensor-Matchansatzes steigen vom Tag 150 mit $1,2 \pm 0,2$ ppbv auf $3,4 \pm 0,4$ ppbv am Tag 190 und schwanken dann um diesen Wert, bis die maximale Abbaurates am Tag 250 mit $4,4 \pm 0,1$ ppbv erreicht wird. Ab dem Tag 280 schwanken die Abbauraten um Null.

Die Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde der Selbstmatchansätze der beiden Satelliten zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Multivariaten Fall. Einen größeren Unterschied zeigen die Sondenabbauraten im Vergleich zum multivariaten Fall. Zu Beginn wurden mit dem Ozonsonden-Matchansatz geringfügig größere Abbauraten bestimmt, die aber im Bereich des statistischen 2σ Fehlers liegen. Dabei handelt es sich um die Ozonabbaurates am Tag 160, in die mit 23 Matches vergleichsweise weniger Datenpunkte in den Ozonsonden-Matchansatz eingehen als in die Regression des multivariaten Ansatzes, der 689 Matches beinhaltet. Im weiteren Verlauf ergibt sich eine gute Übereinstimmung bis am Tag 240 die Abbauraten des Ozonsonden-Matchansatzes größer sind als die des multivariaten Ansatzes. Hier tritt das bereits zu Abbildung 8.2 diskutierte Phänomen auf. Die Ozonabbauraten sind eine Funktion des Sonnenzenithwinkels, weil viele Reaktionen, die zum Ozonabbau führen, bei großen Sonnenzenithwinkeln langsamer sind. Die Ozonsondenstationen liegen weiter außen im Wirbel, so dass die Luftpakete über den Stationen die Sonne unter kleineren Zenithwinkeln sehen mit der Folge von hohen Ozonabbauraten. ILAS II und POAM III beproben zu diesem Zeitpunkt das Wirbelzentrum, bis zu dem die kleineren Sonnenzenithwinkel noch nicht vorgedrungen sind. Allerdings erreichen auch im späteren Winter die Abbauraten des Multisensor-Matchansatzes und der beiden Satelliten-Selbstmatchansätzen nicht die Werte des Ozonsonden-Matchansatzes. Eine mögliche Erklärung dafür ist, dass die Ozonabbauraten im Wirbelinneren kleiner sind.

Wie in diesem Abschnitt gezeigt werden konnte, stimmen (siehe Abbildung 8.4) die Ergebnisse des Ozonsonden- bzw. der weiteren Selbstmatchtechniken sehr gut mit den Ergebnissen der Multisensor-Matchtechnik überein, so dass in Zukunft die gleichzeitige Nutzung von Ozonprofilen verschiedener Sensortypen möglich ist. Allerdings bieten die bisher eingesetzten Satelliten nicht die Möglichkeit einen wirbelgemittelten Ozonabbau zu bestimmen, da dazu die Wirbelfläche zeitlich zu ungleichmäßig beprobt wird.

8.3.2 Der relative Bias zwischen den Ozonsonden und den Satelliten-Experimenten

Neben den Ozonabbauraten ist die Bestimmung des relativen Bias zwischen den Ozonsonden und den Satellitenexperimenten ein weiterer wichtiger Punkt der Auswertung. In Abbildung 8.5 sind die Bias auf dem $\Theta = 475$ K Niveau gezeigt. Die grünen und blauen Quadrate geben die relativen Bias von den Satellitenexperimenten zu den Ozonsonden wieder und die grauen Quadrate den Bias zwischen den beiden Satelliteninstrumenten. Da die Bias der beiden Satelliten zu den Ozonsonden eine starke Übereinstimmung zeigen, wird in der weiteren Diskussion nicht mehr zwischen den beiden Bias unterschieden. Der resultierende Bias zwischen den Satellitenexperimenten ist daher gering.

Zu Beginn des Winters (Tag 150 bis Tag 190), einem Zeitraum mit wenig Ozonzerstörung, wurde ein geringer relativer Bias zwischen den Sonden und den Satellitenexperimenten berechnet. Positive Bias-Werte bedeuten, dass die Ozonsonden mehr Ozon als die Satellitenexperimente, negative Werte bedeuten, dass die Ozonsonden weniger Ozon gemessen haben als die Satelliten-

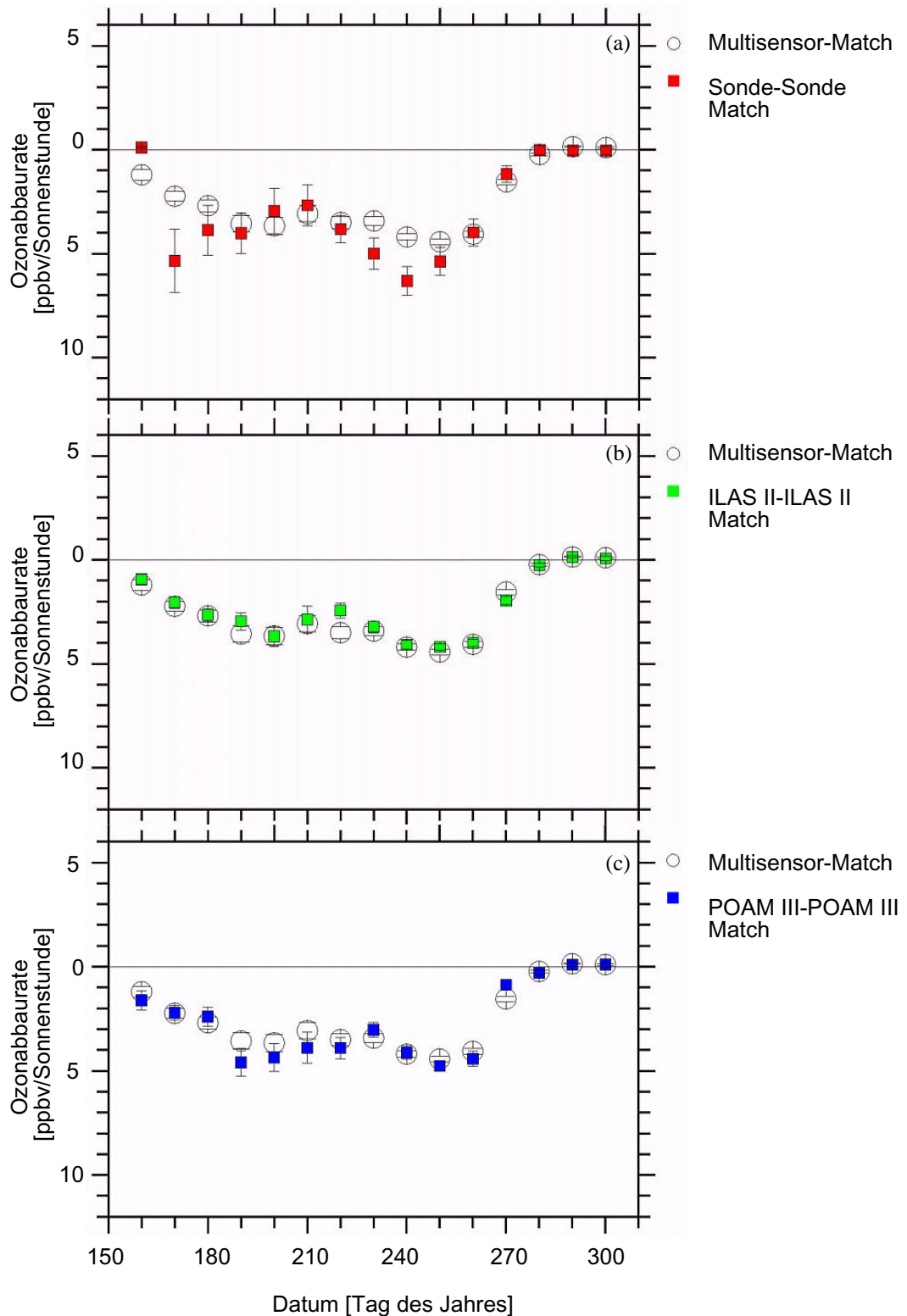


Abbildung 8.4: Vergleich der Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde auf dem $\Theta = 475$ K Niveau der Selbstmatch-Ansätze mit dem Multisensor-Matchansatz. Dabei geben die grauen Kreise die berechneten Ozonabbauraten des Multisensor-Matchansatzes mit dem statistischen 1σ Fehler wieder. In Abbildung (a) sind zum Vergleich die Abbauraten des Ozonsondenmatches in rot, in Abbildung (b) sind die Abbauraten des ILAS II-ILAS II-Matches in grün und in Abbildung (c) sind die POAM III-POAM III Matches in blau dargestellt. Die Fehlerbalken geben den statistischen 1σ Fehler wieder.

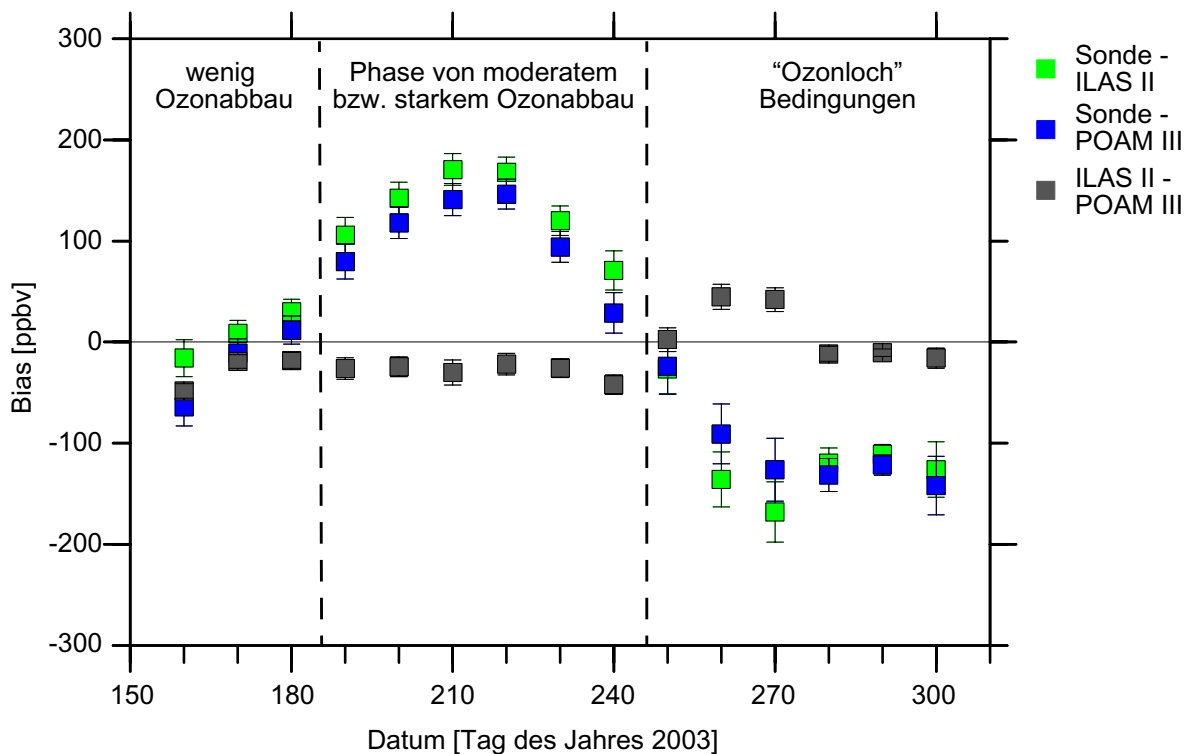


Abbildung 8.5: Ermittelter Bias zwischen den Ozonsonden und den Satellitensensoren auf dem $\Theta = 475$ K Niveau. Die grünen Quadrate beschreiben den zeitlichen Verlauf des Bias zwischen den Sondenmessungen und ILAS II-Messungen. Die blauen Quadrate geben den Bias zwischen den Sonden und POAM III-Messungen und die grauen Quadrate den Bias zwischen ILAS II- und POAM III-Messungen wieder. Die Fehlerbalken geben die statistische 1σ Unsicherheit an.

enexperimente. Im Anschluss steigt der relative Bias stark an und mit zunehmender Ozonzerstörung nimmt auch der Bias stark ab, bis unter “Ozonlochbedingungen” die Satellitenexperimente systematisch mehr Ozon als die Ozonsonden detektieren.

Die starke zeitliche Änderung des Bias zu den Ozonsonden, lässt sich durch die räumlichen Ozongradienten im Ozonfeld des antarktischen Polarwirbels erklären. Durch den chemischen Ozonabbau werden starke horizontale und vertikale Gradienten im Ozonfeld erzeugt die sich im betrachteten Luftpaket ändern können, d.h. die zweite Ableitung der Ozonkonzentration der horizontalen Sichtachse ist von Null verschieden. Dies widerspricht der zugrunde liegenden Annahme bei der Berechnung der Ozonprofile aus den einzelnen Satellitenmessungen im “Daten-Retrieval”. Bei der Berechnung wird angenommen, dass das Ozon schichtweise homogen in den Luftmassen verteilt ist (siehe “Onion-Peeling”, Abschnitt 3.7.2). Diese Annahme ist im betrachteten Zeitraum im antarktischen Polarwirbel häufig nicht erfüllt.

8.4 Ansatz zur Kontrolle der eingesetzten Heizraten mit Matchtechnik

Wie in Kapitel 4 erwähnt, misst ILAS II neben Ozon weitere Spurengase wie CH_4 und N_2O . CH_4 und N_2O können aufgrund ihrer langen atmosphärischen Lebensdauern von 93 ± 18 und 122 ± 24 Jahren (Volk et al., 1997) in erster Näherung als chemisch inert bzw. als passiver Spurenstoffe angesehen werden. Jeweils ein Beispiel eines Vertikalprofils von CH_4 und N_2O ist in Abbildung 8.6 zu sehen. Eine Änderung des Mischungsverhältnisses der einzelnen Stoffe auf einer isentropen Fläche ergibt sich so nur durch dynamische Einflüsse, wie z.B. dem diabatischen Absinken der Luftmassen. So kann aus N_2O - und CH_4 -Messungen das Absinken der Luftmassen im Polarwirbel berechnet werden (Schoeberl et al., 1992, Manney et al., 1994). In diesen Veröffentlichungen wurden Heizraten für den südhemisphärischen Winter 1987 und den nordhemisphärischen Winter 1989 berechnet. Im jeweiligen Winter fanden amerikanische Flugzeugkampagnen in hohen Breiten statt, so dass eine ausreichende Anzahl an N_2O -Messungen im Polarwirbel zur Verfügung stand, um höhenabhängige Heizraten zu bestimmen. Durch die hohe vertikale und zeitliche Auflösung der ILAS II-Messungen ist dies nun auch für den antarktischen Winter 2003 im Prinzip möglich geworden. Da ILAS II entlang eines Breitenkreises misst und sich dieser nur langsam ändert können die berechneten Heizraten nicht als Wirbelmittel angesehen werden. Allerdings sollten diese Daten eine Validierung der eingesetzten Trajektorien ermöglichen.

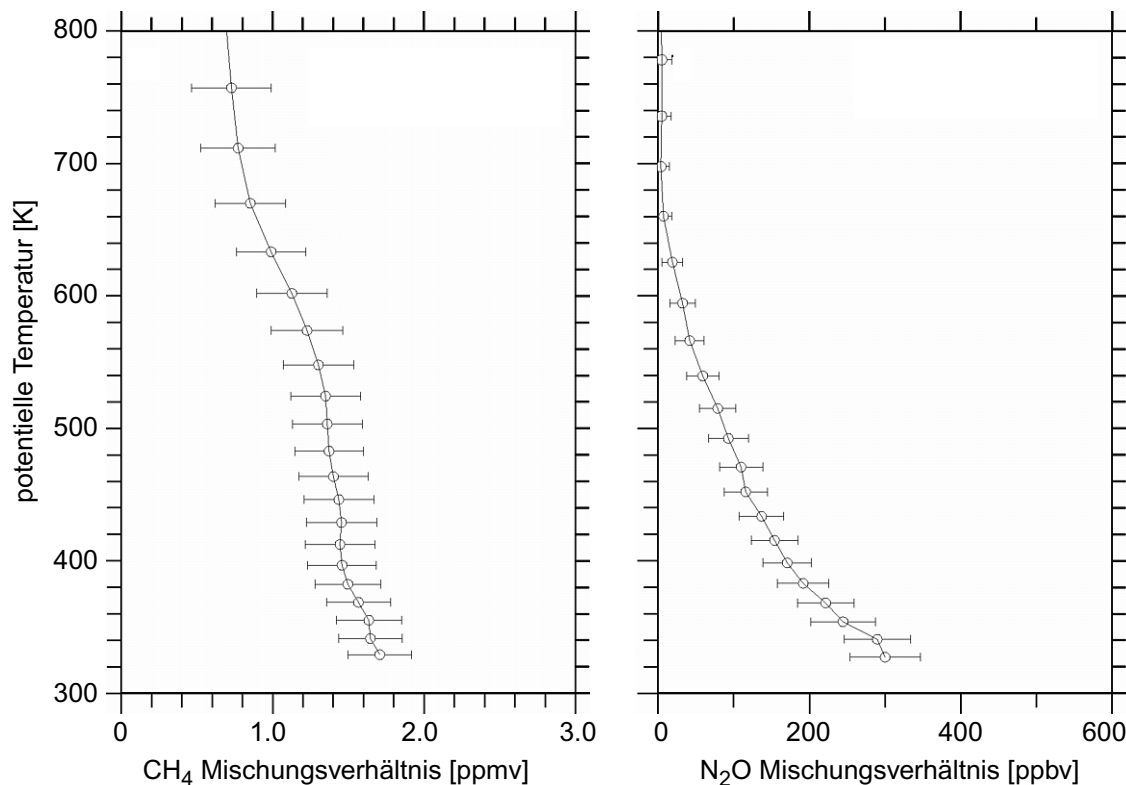


Abbildung 8.6: Gemessene Vertikalprofile von CH_4 (links) und N_2O (rechts) von ILAS II im Polarwirbel Anfang Juli 2003. Jedes Messung ist als Kreis mit den entsprechenden Fehlerbalken dargestellt.

Wendet man die Matchtechnik auf einen passiven Spurenstoff an, d.h. subtrahiert man die zweite von der ersten Messungen (siehe Gleichung (5.1)) entlang einer Trajektorie, so sollte im Mittel entlang der Trajektorien keine Änderung des Mischungsverhältnisses des passiven Spurenstoffes eintreten, wenn die zur Berechnung der Trajektorien eingesetzten Heizraten richtig sind.

Beide Mischungsverhältnisse nehmen nach oben hin ab (siehe Abbildung 8.6), d.h. bei einem zu starken Absinken der Matchtrajektorien müsste eine scheinbare Produktion an CH_4 bzw. N_2O entlang der Trajektorien auftreten, weil bei der zweiten Messung das CH_4 - bzw. N_2O -Mischungsverhältnis größer ist als auf der zuerst beprobten Höhe. Zeigen die Trajektorien ein zu schwaches Absinken, wird ein scheinbarer CH_4 - bzw. N_2O -Verlust entlang der Trajektorie entstehen, da nun das Luftpaket stärker als die Matchtrajektorie abgesunken ist und so in einer größeren Höhe der zweite Spurenstoffwert bestimmt wird.

Bevor die Matchtechnik auf die N_2O - und CH_4 -Messungen angewendet wurde, wurde die Qualität der Daten mit Hilfe der N_2O - CH_4 Korrelation überprüft. Diese Korrelation kann in den Tropen stark variieren, da hier die Luftmassen von der Troposphäre in die Stratosphäre eingetragen werden. Abgesehen davon ergibt sich aber in der Stratosphäre eine kompakte, zeitunabhängige Korrelation, die auch im antarktischen Polarwirbel gilt (Michelsen et al., 1998a, 1998b). In Abbildung 8.7 ist die Korrelation von N_2O gegen CH_4 gezeigt. Abbildung (a) zeigt die Korrelation innerhalb des Polarwirbels. Anstatt einer kompakten Korrelation ergibt sich eine stark verrauschte Korrelation. Die Korrelation umfasst Daten aus 400 K, 425 K, 450 K, 475 K, 500 K, 525 K, 550 K, die entsprechend ihrer Höhe farbig codiert sind. Um das Rauschen zu verringern und ungültige Messungen auszusortieren, wurde die Größe der ermittelten Fehler von N_2O_5 , das ebenfalls von ILAS II gemessen wird, dazu verwendet, um die CH_4 und N_2O Daten zu filtern. Rex et al. (2004) haben durch Vergleiche mit Daten des “*Atmospheric Trace Molecules Observed by Spectroscopy*” Experiments gezeigt, dass sich so ungültige Messungen im ILAS II 1.3 Datensatz reduzieren ließen. Die gefilterten Daten sind in Abbildung 8.7 (b) zu sehen. In Abbildung (c) sind die Daten aus Abbildung (b) nach dem Tag des Jahres eingefärbt. Dies zeigt eine starke Abhängigkeit der Korrelation vom Zeitpunkt der Messung. Die Daten sind nicht nur um einen festen Wert verschoben, sondern zusätzlich ändert die Korrelation ihre Steigung, was beim Vergleich der Zeiträume Tag 150 bis 180 und Tag 280 bis 300 zu sehen ist. Diese Zeitabhängigkeit wurde bereits bei der N_2O - CH_4 Korrelation aus ILAS I Daten beobachtet (Kanzawa et al., 2003), dem Vorgänger von ILAS II. Zum Vergleich ist in Abbildung 8.7 (c) eine Referenzkorrelation von N_2O gegen CH_4 aus dem arktischen Wirbel gezeigt (persönliche Mitteilung Engel, 2005). Dabei handelt es sich um Daten die aus Flugzeugmessungen gewonnen wurden, die in den Jahren 1995-2002 im arktischen Wirbel durchgeführt wurden. Es ist nicht zu erwarten, dass die Korrelation numerisch mit der im antarktischen Polarwirbel übereinstimmt, allerdings ist die gefundene Abweichung zu groß, um allein aus dem Unterschied der beiden Hemisphären zu resultieren. Es ergibt sich, dass die antarktischen ILAS II-Daten zwischen den Tagen 260 bis 300 am besten mit der Referenzkorrelation übereinstimmen. Laut Aussagen des ILAS II-Teams stammt die Zeitabhängigkeit der Korrelation wahrscheinlich von den CH_4 Messungen (persönliche Mitteilung Tilmes, 2005). Insgesamt erscheint die Qualität der CH_4 - und N_2O -Daten zweifelhaft, so dass eine zeitaufwendige Validierung der Daten nötig ist. Diese war im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich, so dass auf eine Auswertung dieser Daten verzichtet wird.

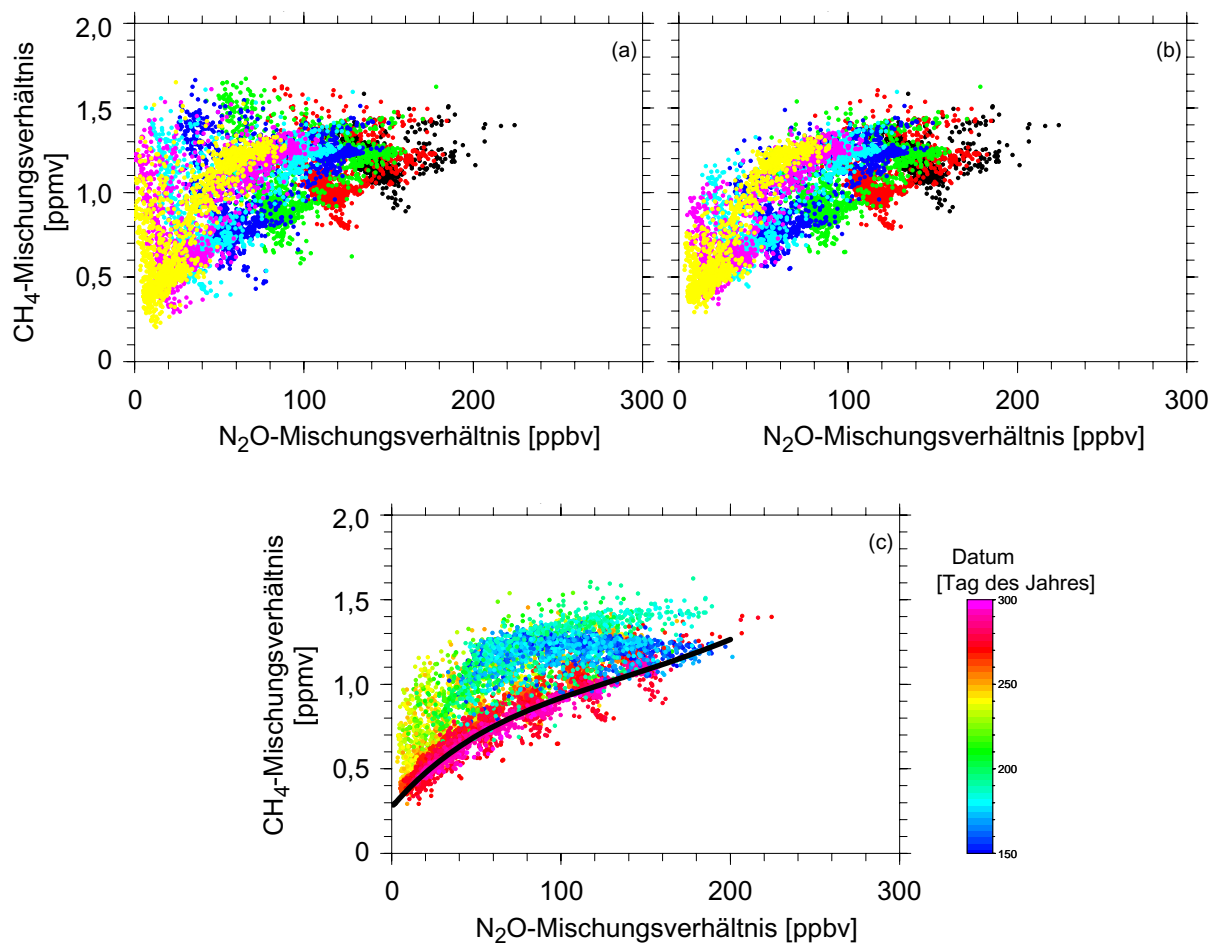


Abbildung 8.7: N₂O-CH₄ Korrelation aus den ILAS II-Messungen. Abbildung (a) zeigt die Korrelation des originalen ILAS-II Datensatzes innerhalb des Polarwirbels für verschiedene Höhen, die farblich markiert sind. Die Daten des 400 K Niveaus sind schwarz, des 425 K Niveaus rot, des 450 K Niveaus grün, des 475 K Niveaus dunkelblau, des 500 K Niveaus hellblau, des 525 K Niveaus pink und 550 K Niveaus gelb eingefärbt. Abbildung (b) zeigt die gefilterten ILAS II Daten, siehe Text, in derselben farbigen Codierung. Abbildung (c) zeigt dieselben Daten wie Abbildung (b), wobei diesmal der Zeitpunkt der Messung farbkodiert ist. In schwarz ist eine Referenzkorrelation aus der Arktis eingezeichnet (persönliche Mitteilung Engel, 2005).

Kapitel 9

Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Bereitstellung von Ozonabbauraten aus einem arktischen und einem antarktischen Winter für die Evaluierung und Verbesserung des Verständnisses der chemischen Prozesse, die zum polaren Ozonabbau führen. Dazu wurden zwei Matchkampagnen durchgeführt, die beide länger als vier Monate dauerten. In beiden Kampagnen konnten Ozonabbauraten bestimmt und so der Ozonverlust quantifiziert werden. Die erste Matchkampagne fand während des arktischen Winters 2002/2003 statt. Die zweite Kampagne wurde im antarktischen Winter 2003 durchgeführt. Da dies die erste antarktische Matchkampagne war, wurden die antarktischen Ozonabbauraten zum Zeitpunkt der höchsten stratosphärischen Chlorbelastung mit der Matchmethode dokumentiert. Die ermittelten Ozonabbauraten wurden zeitnah an fünf Modellierergruppen weitergeleitet, die damit Computermodelle verschiedener Komplexität mit den Ozonabbauraten testeten und die Prozesse die den polaren Ozonabbau in den Modellen beschreiben, bereits verbessern konnten.

Außerdem sollte ein neuer Ansatz entwickelt werden, mit dem Daten verschiedener Ozonsensoren, wie z.B. von Ozonsonden und von Satellitenmessungen gleichzeitig für die Matchmethode nutzbar gemacht werden können: der Multisensor-Matchansatz. Dieser Ansatz wurde exemplarisch für den antarktischen Winter 2003 mit den Daten der Satelliten ILAS II, POAM III und den Ozonsonden entwickelt. Neben den Ozonabbauraten werden bei dieser Methode die systematischen Fehler der Satellitenexperimente relativ zu den Sonden bestimmt. Dies ist im Rahmen der Validierung der Satellitendaten eine wichtige Information für die Arbeitsgruppen, die die Messungen aufbereiten und verbessern.

Die Entwicklung des Multisensor-Matchansatzes zeigte Schwächen in der Fehlerrechnung für die Ozonabbauraten auf, so dass in der Arbeitsgruppe eine neue Fehlerrechnung für den Fall des Ozonsondenmatchansatz entwickelt wurde, die in dieser Arbeit in Kapitel 6 und Kapitel 7 ihre erste Anwendung findet. Für den multivariaten Matchansatz wurde im Rahmen dieser Arbeit eine vereinfachte Fehlerrechnung entwickelt, die eine Obergrenze des zu erwartenden Fehlers angibt.

9.1 Arktis 2002/2003

Der Beginn des Winters 2002/2003 war durch sehr tiefe Temperaturen in der mittleren und unteren Stratosphäre charakterisiert, so dass die Matchkampagne bereits Ende November gestartet wurde. Es konnte für den Höhenbereich von $\Theta = 400$ bis 550 K Ozonabbauraten berechnet werden. Der Polarwirbel wurde, abgesehen von Zeiten großer dynamischer Aktivität, homogen im PV-Raum beprobt, so dass die ermittelten Ozonabbauraten Wirbelmittel darstellen. Der frühe

Start der Kampagne ermöglichte zum ersten Mal die Bestimmung von Ozonabbauraten im Dezember mit der Matchtechnik. Die Abbauraten im Dezember stiegen auf Maximalwerte um $3,9 \pm 1,3$ ppbv / Sonnenstunde am 26. Dezember 2003 auf dem $\Theta = 475$ K Niveau. Die größten Ozonabbauraten wurden auf dem $\Theta = 500$ K Niveau am 23. Januar mit ~ 6 ppbv / Sonnenstunde bzw. ~ 37 ppbv / Tag erreicht. Ab Mitte Januar war der Polarwirbel stark dynamisch gestört, was den Anstieg der Temperaturen innerhalb des Polarwirbels zur Folge hatte, so dass die Ozonabbauraten im Höhenbereich zwischen $\Theta = 425$ und 500 K kontinuierlich bis Anfang März abnahmen und im Anschluss statistisch um Null schwankten.

Die Ozonabbauraten wurden in verschiedenen Tests auf ihre Stabilität überprüft und zeigten sich besonders von Januar bis März robust gegen Änderungen der Heizraten, der Gitterauflösung und gegen die Einführung eines neuen Qualitätskriterium, dem Rückwärtmatchradius. Die eingeführten Änderungen hatten einen größeren Einfluss auf die Ozonabbauraten im Dezember. Die Regressionen in dieser Zeit sind nicht so gut bestimmbar wie im weiteren Verlauf des Winters. Am Beginn der Kampagne konnten zum einen noch nicht viele Matche erzeugt werden und zum anderen sind die Sonnenstunden entlang der Trajektorien recht klein. Des Weiteren schwankten die Ozonabbauraten auf dem $\Theta = 500$ K Niveau stark bei der Einführung des Rückwärtmatchradius. Aus diesem Grund sind die Ozonabbauraten des arktischen Winters 2002/2003 im Dezember und die Ozonabbauraten oberhalb des $\Theta = 475$ K Niveaus mit Vorsicht zu interpretieren.

Mit den ermittelten Ozonabbauraten konnte der integrierte chemische Ozonabbau in den Luftmassen berechnet werden, die durch das diabatisches Absinken am 31. März 2003 die potentiellen Temperaturen von $\Theta = 400, 425, 450, 475$ und 500 K erreichten (äquivalente potentielle Temperaturen). In diesen Luftmassen betrug der integrierte Ozonabbau bis zum 16. März 2003 zwischen $1,2$ und $1,6$ ppmv. Die Zerstörung liegt in der Größenordnung von 20 - 50% des zu Beginn des Winters vorhandenen Ozons. Der größte Verlust mit $\sim 50\%$ tritt in der Luftschicht der 400 K äquivalenten potentiellen Temperatur auf. Die vertikale Integration des Ozonabbaus in den oben genannten Luftschichten ergab einem Abbau von $5 \text{ DU} \pm 1 \text{ DU}$ im Dezember, ein Wert der sich trotz der tiefen Temperaturen aufgrund der fehlenden Sonneneinstrahlung in Grenzen hielt. Über den ganzen Winter ergab sich eine Reduktion der Ozonschicht um $56 \pm 4 \text{ DU}$ bis zum 16. März 2003. Der Ozonabbau in den Schichten über der 500 K äquivalenten potentiellen Temperatur Schicht kann als gering eingeschätzt werden, da der integrierte Ozonabbau in der Luftschicht $\Theta = 500$ K äquivalenter potentieller Temperatur deutlich kleiner war als in den unteren Niveaus. Allerdings gab es in den Luftschichten unterhalb des $\Theta = 400$ K Niveaus weiteren Ozonabbau, so dass die Reduktion der Ozonsäulendichte mit $\sim 56 \text{ DU}$ als untere Grenze angesehen werden muss.

Abbildung 9.1 zeigt die Ozonabbauraten / Tag auf dem $\Theta = 475$ K Niveau für alle bisher durchgeführten Matchauswertungen vom arktischen Winter 1991/1992 bis zum antarktischen Winter 2003. Abgesehen von antarktischen Winter 2003 stellen alle Ozonabbauraten Wirbelmittel dar. Die Ergebnisse der Matchkampagne 1991/1992 sind in von der Gathen (1995) und Rex et al. (1998) beschrieben. Die Kampagnen und Auswertungen der Winter 1994/95 und 1995/96 sowie 1999/2000 sind in Rex et al. (1997b; 1999; 2002) beschrieben, die Auswertungen des Winters 1996/97 in Schulz et al. (2000b), die Jahre 1997/1998 und 1998/1999 in Schulz et al. (2001). Die Auswertung des Winters 2000/2001 wurde im Verlauf der Doktorarbeit durchgeführt, sollte aber keinen Schwerpunkt dieser Arbeit bilden.

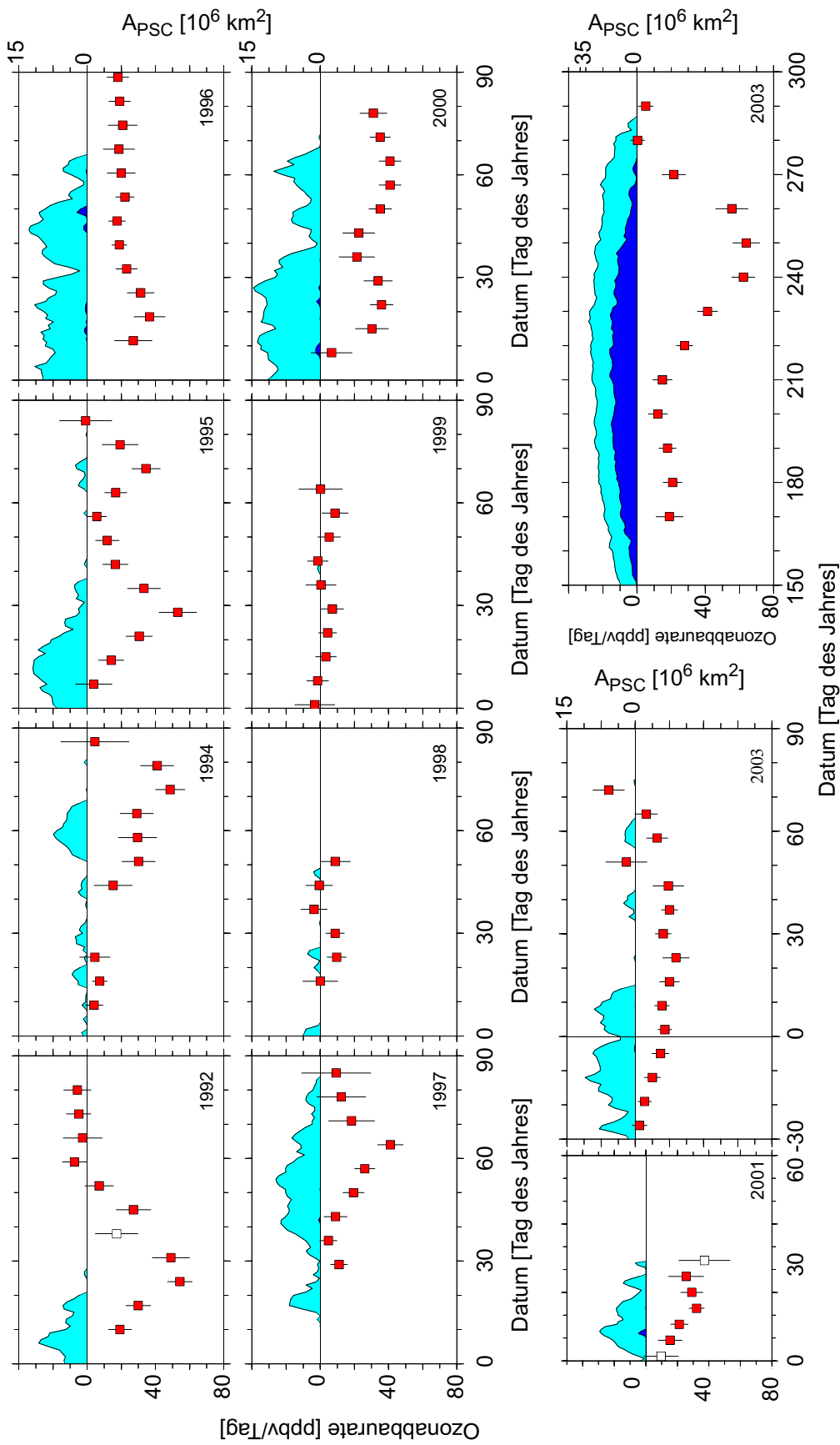


Abbildung 9.1: Zeitlicher Verlauf der Ozonabbauraten der bisherigen Matchauswertungen in ppbv / Tag auf dem $\Theta = 475$ K Niveau. Das Jahr ist im jeweiligen Diagramm mit angegeben. Die roten Datenpunkte im unteren Bereich der Darstellungen geben die über den Polarwirbel gemittelten Ozonabbauraten / Tag (außer für die Antarktis, wo kein Wirbelmittel erreicht wurde) an, wobei jeder Punkt das Ergebnis einer linearen Regression ist, die Matchereignisse aus einem Bereich von 7 bzw. von 10 Tagen um das angegebene Datum enthält. Die blauen Flächen beschreiben die geographische Ausdehnung der Temperaturen unterhalb von T_{NAT} , dunkelblaue Farbbereiche geben die Fläche mit Temperaturen unterhalb von T_{Eis} an. Referenzen siehe Text.

Zwischen den Jahren 1990 bis 2000 gab es eine Zunahme des anorganischen stratosphärischen Chlors von 2,8 ppbv auf 3,5 ppbv auf der Höhe von 55 km. Dieser Wert ist seitdem im Rahmen der Variabilität konstant geblieben (Anderson et al., 2000; WMO, 2003). Der Anstieg im Chlor schlägt sich nicht in einem Trend in den Ozonabbauraten wieder, wie man in Abbildung 9.1 sehen kann. Sichtbar ist vielmehr der Einfluss der meteorologischen Bedingungen auf den Ozonabbau, was die starke zwischenjährliche Variabilität widerspiegelt. Da die Ozonabbauraten in ppbv / Tag nicht nur von der Chloraktivierung, sondern auch von der mittleren Sonnenscheindauer im Polarwirbel abhängig sind, müssen für diesen Vergleich streng genommen die Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde herangezogen werden. Allerdings ist der Effekt auch in den Ozonabbauraten in ppbv / Tag sichtbar.

Der Vergleich der Ozonabbauraten auf dem $\Theta = 475$ K Niveau zeigt, dass der Winter 2002/2003 im Mittelfeld des bisher bekannten Ozonabbaus bzw. der bisher bekannter Ozonabbauraten in der Arktis einzuordnen ist. Die maximale Ozonabbauraten von ~ 23 ppbv / Tag sind eher klein im Vergleich zu anderen Jahren, in denen Abbauraten von 50 bis 60 ppbv / Tag bestimmt wurden.

9.2 Antarktis 2003

Der antarktische Polarwirbel war vom Beginn des Winters bis Mitte Oktober sehr kalt und stellt Ende September kurzzeitig den Rekord für die größte bisher aufgetretene "Ozonloch"-Fläche ein. Bis Mitte Oktober lag der Wirbel annähernd konzentrisch über dem geographischen Südpol. Ab Mitte Oktober, unmittelbar nach Beendigung der Matchkampagne, trat eine fruehe umstellung zur Sommerzirkulation auf.

Es konnte vom Beginn der Kampagne, Anfang Juni, bis Anfang Oktober, Ozonabbauraten im Höhenbereich von $\Theta = 400$ bis 550 K ermittelt werden. Da die meisten Ozonsondenstationen an der Küste der Antarktis liegen, wurde der Wirbel nicht gleichmäßig im PV-Raum beprobt, so dass die gewonnenen Ozonabbauraten und der errechnete integrierte Ozonabbau nicht als Wirbelmittel angesehen werden können. Der zeitliche Verlauf des Ozonabbaus war dabei auf fast allen Höhenniveaus identisch. Zu Beginn des Winters ergaben sich Ozonabbauraten von 2,5-4,0 ppbv / Sonnenstunde, die im Laufe des Septembers auf Werte um ca. 5-6 ppbv / Sonnenstunde anstiegen. Da während der ganzen Zeit die Temperaturen unterhalb von T_{NAT} und T_{Eis} lagen, ist der Anstieg der Ozonabbauraten durch die kleiner werdenden Sonnenzenithwinkel zu erklären. Die lichtabhängigen Reaktionen, die zur Zerstörung des Ozons führen, sind bei kleineren Zenithwinkeln effizienter. Die größte Ozonabbaurate wurde Anfang September auf dem $\Theta = 475$ K Niveau zu $6,3 \pm 0,6$ ppbv / Sonnenstunde bestimmt. Die Ozonabbauraten in ppbv / Tag zeigen einen ähnlichen zeitlichen Verlauf. Diese Abbauraten sind zu Beginn des Winters in Folge der geringen Sonneneinstrahlung mit Werten um 20 ppbv / Tag klein. Die Zunahme des Sonnenlichtes führt zu einem starken Anwachsen der Ozonabbauraten, so dass für einen Zeitraum von ca. 30 Tagen, von Ende August bis Anfang September, Ozonabbauraten von 60-80 ppbv / Tag erreicht wurden. Ab Mitte September gingen die Ozonabbauraten schnell auf Null zurück, da bis zu diesem Zeitpunkt das gesamte Ozon im Höhenbereich zwischen ~ 14 und 21 km zerstört wurde.

Auch die Ozonabbauraten der Antarktis wurden auf die Sensitivität der verwendeten Heizraten und die Einführung eines Rückwärtmatchradius getestet. Während die Ozonabbauraten kaum von den eingesetzten Heizraten abhängig sind, zeigt sich eine stärkere Sensitivität bezüglich des

Rückwärtmatchradius in größeren Höhen. Oberhalb des $\Theta = 475$ K findet man beim Einsatz dieses Qualitätsmerkmals stärkere Schwankungen, während die unteren Niveaus stabil im Rahmen ihrer statistischen 1σ Fehler bleiben.

Da es sich bei den ermittelten Ozonabbauraten in der Antarktis nicht um Wirbelmittel handelt kann keine Aussage über den wirbelgemittelten Ozonabbau getroffen werden, wobei dies auch nicht nötig ist, da das Ozon im Höhenbereich zwischen $\Theta = 400$ und 500 K komplett zerstört wurde. Trotzdem wurde die Ozonabbauraten entlang der absinkenden Luftmassen, die am 31. Oktober 2003 $\Theta = 400, 425, 450, 475, 500, 525$ und 550 K erreichten, integriert und der Ozonabbau berechnet. Dies wurde mit der Abnahme des arithmetischen Mittels der Ozonmischungsverhältnisse der in den Polarwirbel gestarteten Ozonsonden verglichen. Hierbei handelt es sich aus den oben bereits dargelegten Gründen ebenfalls nicht um ein Wirbelmittel. Allerdings zeigt der Vergleich eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse beider Methoden.

9.3 Multisensor-Matchtechnik

Es wurde ein neuer Algorithmus auf Basis der multivariaten Regression entwickelt, mit dem Ozonabbauraten gleichzeitig aus Ozonprofilen verschiedener Sensortypen berechnet werden können. Dabei müssen neben der Ozonabbaurate die systematischen Fehler zwischen den Sensortypen bestimmt werden. Dies wurde exemplarisch am antarktischen Winter 2003 für das $\Theta = 475$ K gezeigt. Dafür wurden die Ozonsondenprofile der Matchkampagne und Ozonsondenprofile der Satellitenexperimente ILAS II und POAM III verwendet.

Die mit der Multisensor-Matchtechnik berechneten Ozonabbauraten stimmen gut mit den Ozonabbauraten der Selbstmatchansätze überein und haben extrem kleine Fehler, da durch die große Anzahl an eingehenden Matches die Regressionsgerade sehr gut bestimmbar ist. Die größte Diskrepanz tritt zwischen den Ozonabbauraten des Ozonsondenmatches und der Multisensor-Matchtechnik auf. Die Ozonabbauraten des Ozonsondenmatches sind zum Zeitpunkt der größten Abbauraten, Mitte August bis Mitte September größer als die mit der Multisensor-Matchtechnik. Dies liegt in erster Linie daran, dass die Ozonsondenstationen weiter außen im Wirbel liegen und dort aufgrund der kleineren Sonnenzenithwinkel die Aktivierung zu einem früheren Zeitpunkt weiter fortgeschritten ist, als auf den Breiten, in denen die Satelliten ihre Messungen durchgeführt haben. Das die mit dem Multisensor-Matchansatz berechneten Ozonabbauraten insgesamt kleiner sind, deutet darauf hin, dass die Ozonabbauraten im Inneren des Wirbels kleiner sind, als am Rand des Wirbels.

Die Abweichung zwischen den Satelliten- und Ozonsondenmessungen wurden zeitabhängig mit jeder Ozonabbaurate bestimmt. Der Bias variiert zwischen -170 und 170 ppbv und besitzt eine starke Zeitabhängigkeit, die möglicherweise durch starke räumliche Gradienten innerhalb des Ozonfelds erklärt werden können. Solche Gradienten entstehen durch den chemischen Ozonabbau. Zum Zeitpunkt der totalen Ozonzerstörung sehen die Satellitenexperimente systematisch mehr Ozon, was darauf hinweist, dass deren Auswertalgorithmen Probleme haben geringe Ozonkonzentrationen korrekt nachzuweisen.

Darüber hinaus wurde der Versuch unternommen, die eingesetzten Heizraten, die zur Berechnung der Matchtrajektorien genutzt wurden, mittels der Matchmethode zu überprüfen. Dazu sollten die ILAS II Messungen der passiven Spurengase CH_4 und N_2O genutzt werden. Allerdings stellte sich heraus, dass die CH_4 und N_2O Daten zum jetzigen Zeitpunkt noch einer zeitaufwendigen Validierung bedürfen um eine wissenschaftliche Nutzung zu erlauben.

Da die Durchführung von weiteren Ozonsondenkampagnen nicht gewährleistet ist, wurde mit dem vorgestellten Algorithmus eine Möglichkeit geschaffen, alle vorhandenen Datenquellen auszunutzen, um weiterhin die Matchzeitreihe aufrecht zu erhalten. Die gute Übereinstimmung zwischen dem Multisensor-Matchansatz und dem Ozonsondenmatch zeigt, dass der Ansatz funktioniert und kann die Fortführung der Zeitreihe gewährleisten.

9.4 Vergleich Arktis mit Antarktis

Vergleicht man die Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde auf $\Theta = 475$ K der Arktis mit denen der Antarktis, so findet man in Jahren mit starkem chemischen Ozonabbau in der Arktis maximale Ozonabbauraten zwischen 5 und 9 ppbv / Sonnenstunde. Diese Werte stimmen gut mit der maximalen Ozonabbaurate in der Antarktis von ~ 6 ppbv / Sonnenstunde überein. Allerdings findet man die größten Ozonabbauraten in der Arktis im Januar, was zeitlich dem Juli in der Antarktis entsprechen würde. Zu diesem Zeitpunkt sind die Ozonabbauraten im antarktischen Polarwirbel kleiner und liegen um die 3-4 ppbv / Sonnenstunde. Eine mögliche Erklärung könnte der stärkere Lichteinfall und die so frühere Aktivierung des arktischen Polarwirbels sein, da dieser häufig durch das Aläutenhoch in Richtung Süden verschoben ist und so früher mehr Sonnenlicht in den Wirbel fällt. Mitte August bis Mitte September, wenn im antarktischen Polarwirbel die höchsten Abbauraten berechnet wurden, was in der Arktis Februar / März entspricht, liegen die Ozonabbauraten in der Regel bei 2-3 ppbv / Sonnenstunde. Die Ausnahme bildet der arktische Winter 1999/2000 in dem dauerhaft Ozonabbauraten von 4-5 ppbv / Sonnenstunde im Februar/März detektiert wurden. Dies führte zum stärksten bisher dokumentierten Ozonabbau in der Arktis, wobei bis zu 70% des Ozons in einzelnen Höhenschichten zerstört wurden (Rex et al., 2002).

Im Unterschied zu den maximalen Ozonabbauraten in ppbv / Sonnenstunde unterscheiden sich die maximalen Ozonabbauraten in ppbv / Tag erheblich (Abbildung 9.1). Die Periode des Ozonabbaus in der Antarktis ist länger und es werden im August / September die maximalen Ozonabbauraten / Tag zwischen 60 und 80 ppbv erreicht. Diese Abbauraten halten für mehr als 30 Tage an, was zu einem Abbau von bis zu 2,4 ppmv ($2/3$ des Ozons auf $\Theta = 475$ K) innerhalb eines Monats führt.

Bei dem hier stattgefundenen Vergleich muss berücksichtigt werden, dass die Ozonabbauraten der Antarktis keine Wirbelmittel darstellen und Ozonabbauraten, die in gleicher Weise den Rand wie das Zentrum des antarktischen Polarwirbels mit einbezogen hätten, sich von den hier bestimmten unterscheiden. Der Vergleich der Ozonabbauraten, die mit dem Ozonsondenmatch und mit dem Multisensor-Matchansatz berechnet wurden, weisen bereits kleine Abweichungen auf, die von unterschiedlichen Orten der Messungen herrühren. Aufgrund der stabilen meteorologischen Verhältnisse des antarktischen Winters 2003 können die bestimmten Abbauraten aber als typisch für einen kalten antarktischen Winter angesehen werden.

9.5 Ausblick

Die Ozonabbauraten helfen bzw. haben bereits geholfen die Prozesse, die zum arktischen Ozonabbau führen, besser zu verstehen - was das Ziel der Matchkampagnen war. Die Interpretation der gewonnenen Matchdaten ist das Thema einer weiteren Dissertation im Rahmen des QUOBI-Projekts, die von Katja Frieler am AWI Potsdam durchgeführt wird.

In Kapitel 4.2 wurde auf den möglichen Effekt, den unterschiedliche Ozonsondentypen auf die Matchergebnisse haben können, eingegangen. Im Rahmen der Doktorarbeit von Astrid Schulz wurde damit begonnen, den Sondentyp der Ozonsonden, die in den einzelnen Matchwintern genutzt wurden, zu ermitteln. Dies wurde im Rahmen dieser Doktorarbeit fortgeführt. Allerdings ist die Anzahl der in eine Regression eingehenden Matche im Fall des Ozonsondenmatchansatzes zu gering, um neben der Ozonabbaurate noch einen weiteren Parameter, wie den Abweichung zwischen zwei Ozonsondentypen, zu ermitteln. Aufgrund der großen Anzahl von Matchen, die in eine Regression des Multisensor-Matchansatzes eingehen, sollte die Möglichkeit bestehen mit dieser Methode verlässliche Ergebnisse über den systematischen Fehler zwischen Ozonsonden unterschiedlichen Typs zu erhalten.

Um den Multisensor-Matchansatz zu komplettieren, muss eine detaillierte Fehlerrechnung bereitgestellt werden. Darüber hinaus sollte die Sensitivität der Ozonabbauraten auf die Einführung des Rückwärtsmatchradius getestet werden.

Der Ansatz die Qualität der eingesetzten Heizraten mit CH_4 - und N_2O -Daten von ILAS II zu überprüfen, sollte nach einer intensiven Prüfung der Daten bzw. dem Erhalt einer neuen Datenversion weiter ausgearbeitet werden.

Anhang A

Ozonsondenstationen in der Arktis

In dieser Liste sind die Ozonsondenstationen aufgelistet, die an der arktischen Match-Kampagnen im Winter 2002/2003 teilgenommen oder nachträglich ihre Daten zur Verfügung gestellt haben. Im Falle einiger Stationen sind zwei Länder eingetragen. Im ersten Land liegt die Station, das zweite Land gibt die Nation an, die für die Ozonsondenaufstiege verantwortlich war.

Kürzel	Stationsname	Land	geogr. Breite (° N)	geogr. Länge (° O)
AB	Aberystwyth	Großbritannien	52,4	355,9
AL	Alert	Kanada	82,5	297,7
AT	Athens	Griechenland	37,9	23,8
CH	Churchill	Kanada	58,8	265,9
DB	De Bilt	Holland	52,1	5,2
ED	Edmonton	Kanada	53,6	245,9
EU	Eureka	Kanada	80,0	274,1
GB	Goose Bay	Kanada	53,3	299,6
HP	Haute Provence	Frankreich	43,9	5,7
HP	Hohenpeissenberg	Deutschland	47,8	11,0
JA	Jaegersborg	Dänemark	55,8	12,5
JO	Jokioinen	Finnland	60,8	23,5
KB	Kühlungsborn	Deutschland	54,1	11,8
KB	Kiruna	Schweden	67,9	21,1
LN	Legionowo	Polen	52,4	21,0
LE	Lerwick	Großbritannien	60,1	358,8
LI	Lindenberg	Deutschland	52,2	14,1

Anhang A: Ozonsondenstationen in der Arktis

Kürzel	Stationsname	Land	geogr. Breite (° N)	geogr. Länge (° O)
MS	Moshiri	Japan	44,4	142,3
NA	Ny-Ålesund	Norwegen/Deutschland	78,9	11,9
OR	Ørland	Norwegen	63,4	9,2
PA	Payerne	Schweiz	46,8	6,9
PR	Prague	Tschechische Republik	50,0	14,5
RE	Keflavik	Island	64,0	337,3
RS	Resolute	Kanada	74,7	265,0
CA	San Pietro Capofiume	Italien	44,7	11,6
SA	Salekhard	Rußland	66,5	66,7
SC	Scoresbysund	Grönland/Dänemark	70,5	338,0
SO	Sodankylae	Finnland	67,4	26,7
TL	Thessaloniki	Griechenland	40,6	23,0
TH	Thule	Grönland/Dänemark	76,5	291,3
UC	Uccle	Belgien	50,8	4,4
VA	Valentia	Irland	51,9	349,8
YA	Yakutsk	Rußland	62,0	129,7
PS	RV Polarstern	Deutschland	variabel	variabel

Anhang B

Ozonsondenstationen in der Antarktis

In dieser Liste sind die Ozonsondenstationen aufgelistet, die an der Match-Kampagnen im antarktischen Winter 2003 teilgenommen haben. Alle Stationen liegen in der Antarktis. Daher sind an erster Stelle die Nationen angegeben, die die Station verwalten und dann die Länder, die dort für die Ozonsondenstarts verantwortlich sind.

Kürzel	Station	Nation	geogr. Breite (° S)	geogr. Länge (° O)
BG	Belgrano2	Argentinien/Spanien	77,9	325,4
DA	Davis	Australien	68,6	78,0
DDU	Durmont d'Urville	Frankreich	66,4	140,0
MR	Marambio	Argentinien/Finnland	64,2	303,3
MU	McMurdo	USA	77,9	166,7
NM	Neumayer	Deutschland	70,7	351,7
RO	Rothera	Großbritannien	67,6	291,9
SP	Ammundson Scott	USA	90,0	102,0
SY	Syowa	Japan	69,0	39,6

Literaturverzeichnis

- Adriani, A., P. Massoli, G. Di Donfrancesco, F. Cairo, M. L. Moriconi und M. Snels, Climatology of polar stratospheric clouds based on lidar observations from 1993 to 2001 over McMurdo Station, Antarctica, *J. Geophys. Res.*, akzeptiert, 2004.
- Anderson, J., J. M. Russel III, S. Solomon und L. E. Deaver, Halogen Occultation Experiment confirmation of stratospheric chlorine decreases in accordance with the Montreal Protocol, *J. Geophys. Res.*, *105*, 4483-4490, 2000.
- Austin, J., D. Shindell, S.R. Beagley, C. Brühl, M. Dameris, E. Manzini, T. Nagashima, P. Newman, S. Pawson, G. Pitari, E. Rozanov, C. Schnadt und T.G. Shepherd, Uncertainties and assessments of chemistry-climate models of the stratosphere. *Atmos. Chem. Phys.*, *3*, 1-27, 2003.
- Baldwin, M. P., X. Cheng und T. J. Dunkerton, Observed correlations between winter-mean tropospheric and stratospheric circulation anomalies, *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 1141-1144, 10.1029/94GL01010, 1994.
- Becker, G., R. Müller, D. S. McKenna, M. Rex und K. S. Carslaw, Ozone loss rates in the Arctic stratosphere in the winter 1991/92: Model calculations compared with Match results. *Geophys. Res. Lett.*, *25*, 4325-4328, 1998.
- Becker, G. R. Müller, D. S. McKenna, M. Rex, K. S. Carslaw und H. Oelhaf, Ozone loss rates in the Arctic stratosphere in the winter 1994/95: Model simulations underestimate results of the Match analysis, *J. Geophys. Res.*, *105*, 15175-15184, 2000.
- Bates, D. R., und M. Nicolet, Atmospheric hydrogen, *Publ. Astron., Soc. Pac.*, *62*, 106-110, 1950.
- Bösch, H., C. Camy-Peyret, M. P. Chipperfield, R. Fitzenberger, H. Harder, U. Platt und K. Pfeilsticker, Upper limits of stratospheric IO and OIO inferred from center-to-limb-darkening-corrected balloon-borne solar occultation visible spectra: Implications for total gaseous iodine and stratospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4455, doi:10.1029/2002JD003078, 2003.
- Brasseur, G. P., X. Tie, P. J. Rasch und F. Lefèvre, A three-dimensional simulation of the Antarctic ozone hole: Impact of anthropogenic chlorine on the lower stratosphere and upper troposphere, *J. Geophys. Res.*, *102*, 8909-8930, 1997.
- Brasseur, G. P., J. J. Orlando und G. S. Tyndall (Hrsg.), *Atmospheric chemistry and global change*, Oxford University Press, New York, USA, 1999.
- Brewer, A., Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapor distribution in the stratosphere, *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, *75*, 351-363, 1949.

- Burkholder, J. B., J. J. Orlando und C. J. Howard, Ultraviolet absorption cross sections of Cl₂O₂ between 210 and 410 nm, *J. Phys. Chem.*, *94*, 687-695, 1990.
- Carslaw, K. S., B. P. Luo, S. Clegg, T. Peter, P. Brimblecombe und P. Crutzen, Stratospheric aerosol growth and HNO₃ gas phase depletion from coupled HNO₃ and water uptake by liquid particles, *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 2479-2482, 1994.
- Carslaw, K. S., M. Wirth, A. Tsias, B. P. Luo, A. Dörnbrack, M. Leutebecher, H. Volkert, W. Renger, J. T. Bacmeister und E. Reimer, Increased stratospheric ozone depletion due to mountain-induced atmospheric waves, *Nature*, *392*, 675-678, 1998.
- Carslaw, K. S., T. Peter, J. T. Bacmeister und S. Eckermann, Widespread solid particle formation by mountain waves in the Arctic stratosphere, *J. Geophys. Res.*, *104*, 1827-1836, 1999.
- Chapman, S., A theory of upper atmospheric ozone, *Mem. R. Soc.*, *3*, 103-125, 1930.
- Charney, J. G. und P. G. Drazin, Propagation of planetary-scale disturbances from the lower into the upper atmosphere, *J. Geophys. Res.*, *66*, 83-109, 1961.
- Christensen, T., B. M. Knudsen, M. Streibel, S. B. Andersen, A. Benesova, G. Braathen, H. Claude, J. Davies, H. De Backer, H. Dier, V. Dorokhov, M. Gerding, M. Gil, B. Henchoz, H. Kelder, R. Kivi, E. Kyrö, Z. Litynska, D. Moore, G. Peters, P. Skrivankova, R. Stübi, T. Turunen, G. Vaughan, P. Vitatte, A. F. Vik, P. von der Gathen und I. Zaitcev, Vortex-averaged Arctic ozone depletion in the winter 2002/2003, *Atmos. Chem. Phys.*, *5*, 131-138, 2005.
- Chubachi, S., A special ozone observation at Syowa station, Antarctica, from Feb. 1982 to Jan. 1983, in: C. S. Zerefos und A. Ghazi, Atmospheric Ozone, Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium held in Halkidiki, Griechenland, 3.-7. September 1984, D. Reidel Publ. Comp., Dordrecht, 285, 1984.
- Crutzen, P. J., The influence of nitrogen oxide on the atmospheric ozone content, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, *96*, 320-327, 1970.
- Del Negro, L. A., D. W. Fahey, S. G. Donnelly, R. S. Gao, E. R. Keim, R. C. Wamsley, E. L. Woodbridge, J. E. Dye, D. Baumgardner, B. W. Gandrud, J. C. Wilson, H. H. Jonsson, M. Loewenstein, J. R. Podolske, C. R. Webster, R. D. May, D. R. Worsnop, A. Tabazadeh, M. A. Tolber, K. K. Kelly und K. R. Chan, Evaluating the role of NAT, NAD, and liquid H₂SO₄/H₂O/HNO₃ solutions in Antarctic polar stratospheric cloud aerosol: Observations and implications, *J. Geophys. Res.*, *102*, 13255-13282, 1997.
- Dessler, A.E., *The Chemistry and Physics of Stratospheric Ozone*, Band 74 von International Geophysics Series, Academic Press, 2000,
- Dobson, G. M. B., D. N. Harrison und J. Lawrence, Measurements of the amount of ozone in the earth's atmosphere and its relation to other geophysical conditions: Part III, *Proc. R. Soc.*, *A122*, 456-486, 1929.
- Dobson, G.M.B., Origin and distribution of polyatomic molecules in the atmosphere, *Proc. Roy. Soc. London A*, *236*, 187-193, 1956.
- Dunkerton, T. J. und D. P. Delisi, Evolution of potential vorticity in the winter stratosphere of January-February 1979, *J. Geophys. Res.*, *91*, 1199-1208, 1986.

- Ertel, H., Ein neuer hydrodynamischer Wirbelsatz, *Meteorol. Z.*, 59, 271-281, 1942.
- Fahey, D. W., R. S. Gao, K. S. Carslaw, J. Kettleborough, P. J. Popp, M. J. Northway, J. C. Holecek, S. C. Ciciora, R. J. McLaughlin, T. L. Thompson, R. H. Winkler, D. G. Baumgardner, B. Gandrud, P. O. Wennberg, S. Dhaniyala, K. McKinney, Th. Peter, R. J. Salawitch, T. P. Bui, J. W. Elkins, C. R. Webster, E. L. Atlas, H. Jost, J. C. Wilson, R. L. Herman, A. Kleinböhl und M. von König, The detection of large HNO₃-containing particles in the winter Arctic stratosphere, *Science*, 291, 1026-1031, 2001.
- Farman, J.C., B. G. Gardiner und J. D. Shanklin, Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction, *Nature*, 315, 207-210, 1985.
- Glaccum, W., R. L. Lucke, R. M. Bevilacqua, E. P. Shettle, J.S. Hornstein, D.T. Chen, J.D. Lumpe, S.S. Krigman, D.J. Debrestian, M.D. Fromm, F. Dalaudier, E. Chassefière, C. Deniel, C.E. Randall, D.W. Rusch, J.J. Olivero, C. Brogniez, J. Lenoble und LR. Kremer, The Polar Ozone and Aerosol Measurement instrument, *J. Geophys. Res.*, 101(D9), 14,479-14,488, 1996.
- Goutail F. , J.-P. Pommereau, F. Lefèvre, M. Van Roozendael, S. B. Andersen, B.-A. Kåstad Høiskar, V. Dorokhov, E. Kyrö, M. P. Chipperfield und W. Feng, Early unusual ozone loss during the Arctic winter 2002/2003 compared to other winters, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 665-677, 2005.
- Hanson, D., und K. Mauersberger, Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 855-858, 1988.
- Harder, H., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. P. Chipperfield, R. Fitzenberger, S. Payan, D. Perner, U. Platt, B.-M. Sinnhuber und K. Pfeilsticker, Comparison of measured and modeled stratospheric BrO: Implications for the total amount of stratospheric bromine, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 3695-3698, 10.1029/1999GL011215, 2000.
- Haynes, P. H., C. J. Marks, M. E. McIntyre, T. G. Sheperd und K. P. Shine, On the 'downward control' of extratropical diabatic circulations and eddy-induced mean zonal forces, *J. Atmos. Sci.*, 48, 651-679, 1991.
- Hines, C. O., The upper atmosphere in motion, *American Geophysical Union*, 22, 1974.
- Hofmann, D. J., T. L. Deshler, P. Amedieu, W. A. Matthews, P. V. Johnston, Y. Kondo, W. R. Sheldon, G. J. Byrne und J. R. Benbrook, Stratospheric clouds and ozone depletion in the Arctic during January 1989, *Nature*, 340, 117-121, 1989.
- Holleman A.F., N. Wiberg, *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*, Walter de Gruyter, Berlin New York, 1995.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood und L. Pfister, Stratosphere-Troposphere exchange, *Rev. Geophys.*, 33, 403-439, 1995.
- Hoppel K., R. Bevilacqua, G. Nedoluha, C. Daniel, F. Lefvre, J. Lumpe, M. Fromm, C. Randall, J. Rosefield und M. Rex, POAM III observations of arctic ozone loss for the 1999/2000 winter, *J. Geophys. Res.*, 107, 8262, doi:10.1029/2001JD000476, 2002.

- Hoppel, K., R., Bevilacqua, T. Canty, R. Salawitch und M. Santee, A measurement/model comparison of ozone photochemical loss in the Antarctic ozone hole using POAM observations and the Match technique, *eingereicht an J. Geophys. Res.*, 2005.
- Huder, K. J., und W. B. DeMoore, Absorption cross sections of the ClO dimer, *J. Phys. Chem.*, *99*, 3905-3908, 1995.
- Hurrell, J.W., Decadal Trends in the North Atlantic Oscillation: Regional Temperatures and Precipitation, *Science*, *269*, 676-679, 1995.
- Irie, H., K. L. Pagan, A. Tabazadeh, M. J. Legg, und T. Sugita, Investigation of polar stratospheric cloud solid particle formation mechanisms using ILAS and AVHRR observations in the Arctic, *Geophys. Res. Lett.*, *31*, doi:10.1029/2004GL020246, 2004.
- Kanzawa, H., T. Sugita, H. Nakajima, G. E. Bodeker, H. Oelhaf, M. Stowasser, G. Wetzel, A. Engel, U. Schmidt, I. Levin, G.C. Toon, B. Sen, J.-F. Blavier, J.H. Park, L.L. Pan, T. Yokota, M. Suzuki, M. Shiotani und Y. Sasano, Validation and data characteristics of nitrous oxide and methane profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer ILAS and processed with the Version 5.20 algorithm, *J. Geophys. Res.*, *108*, 8003, doi:10.1029/2002JD002458, 2003.
- Koop, T., B. Luo, A. Tsias und T. Peter, Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions, *Nature*, *406*, 611 - 614, doi:10.1038/35020537, 2000.
- Krüger K., B. Naujokat und K. Labitzke, The unusual midwinter warming in the southern hemisphere stratosphere 2002: a comparison to northern hemisphere phenomena, *J. Atmos. Soc.*, *62* (3), 603-613, 2005.
- Labitzke, K. und H. van Loon, Associations between the 11-year solar cycle, the QBO and the atmosphere. Part I: the troposphere and the stratosphere in the northern hemisphere in winter, *J. A. T. Phys.*, *50*, 197-206, 1988.
- Labitzke, K. und H. van Loon, The signal of the 11-year solar cycle in the upper troposphere-lower stratosphere, *Space Sci. Rev.*, *80*, 393-410, 1997.
- Labitzke, K., *Die Stratosphäre. Phänomen, Geschichte, Relevanz*. Springer Verlag Berlin/Heidelberg/New York, 1999.
- Lehman, R., P. von der Gathen, M. Rex und M. Streibel, Statistical analysis of the precision of the Match method, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, akzeptiert, 2005.
- Lucke, R. L., D. R. Korwan, R. M. Bevilacqua, J. S. Hornstein, E. P. Shettle, D. T. Chen, M. Daehler, J. D. Lumpe, M. D. Fromm, D. Debrestian, B. Neff, M. Squire, G. König-Langlo und J. Davies, The Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM) III instrument and early validation results, *J. Geophys. Res.*, *104(D15)*, 18785-18800, 10.1029/1999JD900235, 1999.
- Lumpe, J. D., R. M. Bevilacqua, K. W. Hoppel und C. E. Randall, POAM III retrieval algorithm and error analysis, *J. Geophys. Res.*, *107*, 4575, doi:10.1029/2002JD002137, 2002.
- Manney, G. L., R. W. Zurek, A. O'Neil und R. Swinbank, On the motion of Air through the Stratospheric Polar Vortex, *J. Atmos. Sci.*, *51*, 2973-2993, 1994a.

- Manney, G. L., L. Froidevaux, J. W. Waters, R. W. Zurek, W. G. Read, L. S. Elson, J. B. Kumer, J. L. Mergenthaler, A. E. Roche, A. O. Neill, R. S. Harwood, I. MacKenzie und R. Swinbank, Chemical depletion of ozone in the Arctic lower stratosphere during winter 1992-93, *Nature*, 370, 429-343, 1994b.
- Manney, G. L., L. Froidevaux, M. L. Santee, R. W. Zurek und J. W. Waters, MLS observations of Arctic ozone loss in 1996-97, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2697-2700, 1997.
- Manney, G.L., H.A. Michelsen, M.L. Santee, M.R. Gunson, F.W. Irion, A.E. Roche und N.J. Livesey, Polar vortex dynamics during spring and fall diagnosed using trace gas oberbarions from the Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy instrument, *J. Geophys. Res.*, 104, 18841-18866, 1999.
- Marti, J. und K. Mauersberger, A survey and new measurements of ice vapor pressure at temperature between 170 and 250 K, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 363-366, 1993.
- Michelsen, H.A., G.L. Manney, M.R. Gunson, C.P. Rinsland und R. Zander, Correlations of stratospheric abundances of CH₄ and N₂O derived from ATMOS measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 103, 2777-2780, 1998a.
- Michelsen, H.A., G.L. Manney, M.R. Gunson und R. Zander, Correlations of stratospheric abundances of NO_y, O₃, N₂O and CH₄ derived from ATMOS measurements, *J. Geophys. Res.*, 103, 28347-28359, 1998b.
- McIntyre, M. E. und T. N. Palmer, Breaking planetary waves in the stratosphere. *Nature*, 305, 593-600, 1983.
- McIntyre, M.E. und T.N. Palmer, The "surf zone" in the stratosphere, *J. Atmos. Terr. Phys.*, 46, 825-849, 1984.
- Molina, M. J. und F. S. Rowland, Stratospheric sink for chlorofluoromethans: Chlorine atom catalysed destruction of ozone, *Nature*, 249, 810-812, 1974.
- Molina, L. T. und M. J. Molina, Production of Cl₂O₂ from the self-reaction of the ClO radical, *J. Phys. Chem.*, 91, 433-436, 1987.
- Müller, M., R. Neuber, P. Massoli, F. Cairo, A. Adriani, M. L. Moriconi und G. Di Donfrancesco, Differences in Arctic and Antarctic PSC occurrence as observed by lidar in Ny- Alesund (79° N, 12° E) and McMurdo (78° S, 167° E), *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 4, 6837-6866, 2004.
- Müller, R., J.-U. Groöß, D. S. McKenna, P. J. Crutzen, C. Brühl, J. M. Russel III und A. F. Tuck, HALOE observations of the vertical structure of chemical ozone depletion in the Arctic vortex during winter and early spring 1996-1997, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2717-2720, 1997.
- Nakajima, H., M. Suzuki, A. Matsuzaki, T. Ishigaki, K. Waragai, Y. Mogi, N. Kimura, N. Araki, T. Yokota, H. Kanzawa, T. Sugita und Y. Sasano, Characteristics and performance of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) in orbit, *J. Geophys. Res.*, 107, NO. D24, 8213, doi:10.1029/2001JD001439, 2002.

- Nakajima, H., M. Suzuki, T. Yokota, T. Sugita, Y. Itou, M. Kaji, N. Araki, K. Waragai, H. Yamashita, H. Kanzawa, and Y. Sasano, Tangent height registration for the solar occultation satellite sensor ILAS: A new technique for Version 5.20 products, *J. Geophys. Res.*, *107*, NO. D24, 8215, doi:10.1029/2001JD000607, 2002.
- Nakajima, H., T. Sugita, T. Yokota and Y. Sasano, Atmospheric environment monitoring by the ILAS-II onboard the ADEOS-II satellite, *Proc. SPIE*, *5571*, 293-300, 2004.
- Nash, E. R., P. A. Newman, J. E. Rosenfield und M. R. Schoeberl, An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity, *J. Geophys. Res.*, *101*, 9471-9478, 1996.
- Naujokat, B. und K. Grunow: The stratospheric Arctic winter 2002/03: Balloon flight planning by trajectory calculations, *Proceedings of the 16th ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and Related Research*, St.Gallen 2003 (ESA SP-530), 421-425, 2003.
- Nedoluha, G.E., R.M. Bevilacqua, K.W. Hoppel, M. Dähler, E.P. Shettle, J.H.Hornstein, M.D. Fromm, J.D. Lumpe und J.E. Rosenfield, POAM III measurements of dehydration in the Antarctic lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *27*, 1683-1686, 2000.
- Pan, L. L., W. J. RAndel, H. Nakajima, S. T. Massie, H. Kanzawa, Y. Sasano, T. Yokota, T. Sugita, S. Hayashida und S. Oshchepkov, Satellite observation of dehydration in the Arctic polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *29*, 1184, doi:10.1029/2001GL014147, 2002.
- Pfeilsticker, K., W. T. Sturges, H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. P. Chipperfield, A. Engel, R. Fitzenberger, M. Müller, S. Payan und B.-M. Sinnhuber, Lower stratospheric organic and inorganic bromine budget for the arctic winter 1998/99, *Geophys. Res. Lett.*, *27*, 3305-3308, 10.1029/2000GL011650, 2000.
- Popp, P. J., M. J. Northway, J. C. Holecek, R. S. Gao, D. W. Fahey, J. W. Elkins, D. F. Hurst, P. A. Romashkin, G. C. Toon, B. Sen, S. M. Schauffler, R. J. Salawitch, C. R. Webster, R. L. Herman, H. Jost, T. P. Bui, P. A. Newman und L. R. Lait, Severe and extensive denitrification in the 1999 - 2000 Arctic winter stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *28*, 2875-2878, 10.1029/2001GL013132, 2001.
- Portmann, R. W., S. Solomon, R. R. Garcia, L. W. Thomason, L. R. Poole und M. P. McCormick, Role of aerosolvariations in anthropogenic ozone depletion in the polar regions, *J. Geophys. Res.*, *101*, 22991-23006, 1996.
- Proffitt, M.H., J. J. Margitan, K.K. Kelly, H. Loewenstein, J. R. Podolske und K. R. Chan, Ozone loss in the Arctic polar vortex inferred from high altitude aircraft measurements, *Nature*, *347*, 31-36, 1990.
- Proffitt, M. H. K. Aiken, J. J. Margitan, H. Loewenstein, J. R. Podolske, A. Weaver, K. R. Chan, H. Fast und J. W. Elkins, Ozone loss inside the northern polar vortex during the 1991-1992 winter, *Science*, *261*, 1150-1154, 1993.
- Ravishankara, A. R. und D. R. Hanson, Differences in the reactivity of Type I polar stratospheric clouds depending on their phase, *J. Geophys. Res.*, *101*, 3885-3890, 1996.
- Rex, M., Der Ozonabbau in der arktischen Stratosphäre: Ergebnisse einer neuen Meßstrategie, Dissertation, FU Berlin, 1997a.

- Rex, M., N. R. P. Harris, P. von der Gathen, R. Lehmann, G. O. Braathen, E. Reimer, A. Beck, M. P. Chipperfield, R. Alfier, M. Allaart, F. O'Connor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. G. Molyneux, H. Nakane, J. Notholt, M. Rummukainen und P. Viatte, Prolonged stratospheric ozone loss in the 1995-96 Arctic winter, *Nature*, 389, 835-838, 1997b.
- Rex, M., P. von der Gathen, N. R. P. Harris, D. Lucic, B. M. Knudsen, G. O. Braathen, S. J. Reid, H. De Backer, H. Claude, R. Fabian, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, I. S. Mikkelsen, M. Rummukainen, H. G. Smit, J. Stählerin, C. Varotsos und I. Zaitcev, In situ measurements of stratospheric ozone depletion rates in the Arctic winter 1991/1992: A Lagrangian approach, *J. Geophys. Res.*, 103, 5843-5853, 1998.
- Rex, M., P. von der Gathen, G. O. Braathen, N. R. P. Harris, E. Reimer, A. Beck, R. Alfier, R. Krüger-Carstensen, M. Chipperfield, H. De Backer, D. Balis, F. O'Connor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, A. Gamma, M. Gil, E. Kyrö, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. Molyneux, G. Murphy, S. J. Reid, M. Rummukainen und C. Zerefos, Chemical ozone loss in the Arctic winter 1994/95 as determined by the Match technique, *J. Atm. Chem.*, 24, 35-59, 1999.
- Rex, M., Salawitch, R.J., Harris, N.R.P., Gathen, P. von der, Braathen, G.O., Schulz, A., Deckelmann, H., Chipperfield, M., Sinnhuber, B.M., Reimer, E., Alfier, R., Bevilacqua, R., Hoppel, K., Fromm, M., Lumpe, J., Kllmann, H., Kleinbhl, A., Bremer, H., Knig, M. von, Knzi, K., Toohey, D., Vmel, H., Richard, E., Aikin, K., Jost, H., Greenblatt, J.B., Loewenstein, M., Podolske, J.R., Webster, C.R., Flesch, G.J., Scott, D.C., Herman, R.L., Elkins, J.W., Ray, E.A., Moore, F.L., Hurst, D.F., Romashkin, P., Toon, G.C., Sen, B., Margitan, J.J., Wennberg, P., Neuber, R., Allart, M., Bojkov, R.B., Claude, H., Davies, J., Davies, W., Backer, H. de, Dier, H., Dorokhov, V., Fast, H., Kondo, Y., Kyr, E., Litynska, Z., Mikkelsen, I.S., Molyneux, M.J., Moran, E., Murphy, G., Nagai, T., Nakane, H., Parrondo, C., Ravegnani, F., Skrivankova, P., Viatte, P., Yushkov, V.(2002). Chemical loss of Arctic ozone in winter 1999/2000, *J. of Geophys. Res.*, 107, 8276, doi: 10.1029/2001JD000533, 2002.
- Rex, M., R.J. Salawitch, M.L. Santee, J.W. Waters, K. Hoppel und R. Bevilacqua, On the unexplained stratospheric ozone losses during cold Arctic Januaries, *Geophys. Res. Lett.*, 30, doi: 10.1029/2002GL016008, 2003.
- Rex M., M. Streibel, P. von der Gathen und H. Gernandt, Multi Sensor Match:Ozone loss rates during the 2003 Antarctic winter and cross-validation of ILAS II, POAM III and ozonesondes, Vortrag im Rahmen des ILAS II Treffen in Tokyo, 2004.
- Sasano, Y., Y. Terao, H. L. Tanaka, T. Yasunari, H. Kanzawa, H. Nakajima, T. Yokota, H. Nakane, S. Hayashida und N. Saitoh, ILAS observations of chemical ozone loss in the Arctic vortex during early spring 1997, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 213-216, 2000.
- Salawitch, R. J., D. K. Weisenstein, L. J. Kovalenko, C. E. Sioris, P. O. Wennberg, K. Chance, M. K. W. Ko und C. A. McLinden, Sensitivity of Ozone to Bromine in the Lower Stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, akzeptiert, 2004.
- Scaife, A. A., N. Butchart, S. Pawson, M. Keil, J. Nash und I. N. James, Seasonal and interannual variability of the stratosphere diagnosed from UKMO TOVS analyses, *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 126, 2585-2604, 2000.
- Schoeberl, M.R., L.R. Lait P.A. Newman und J.E. Rosenfield, The structure of the Polar Vortex, *J. Geophys. Res.*, 97 (D8), 7859-7882, 1992.

- Scherhag, R., Die explosionsartige Stratosphärenenerwärmung des Spätwinters 1951/52, *Ber. Deut. Wetterdienst*, 38, 51-63, 1952.
- Schulz, A., Bestimmung des Ozonabbaus in der arktischen und subarktischen Stratosphäre, Dissertation, Freie Universität Berlin, 2000a.
- Schulz, A., M. Rex, J. Steger, N. R. P. Harris, G. O. Braathen, E. Reimer, R. Alfier, A. Beck, M. Alpers, J. Cisneros, H. Claude, H. De Backer, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, S. Godin, G. Hansen, H. Kanazawa, B. Kois, Y. Kondo, E. Kosmidis, E. Kyrö, Z. Litynska, M. J. Molyneux, G. Murphy, H. Nakane, C. Parrondo, F. Ravegnani, C. Varotsos, C. Vialle, P. Viatte, V. Yushkov und P. von der Gathen, Match observations in the Arctic winter 1996/97: High stratospheric ozone loss rates correlate with low temperatures deep inside the polar vortex, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 205-208, 2000b.
- Schulz, A., M. Rex, N. R. P. Harris, G. O. Braathen, E. Reimer, R. Alfier, I. Kilbane-Dawe, S. Eckermann, M. Allaart, M. Alpers, B. Bojkov, J. Cisneros, H. Claude, E. Cuevas, J. Davies, H. De Backer, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, S. Godin, B. Johnson, B. Kois, Y. Kondo, E. Kosmidis, E. Kyrö, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. J. Molyneux, G. Murphy, T. Nagai, H. Nakane, F. O'Connor, C. Parrondo, F. J. Schmidlin, P. Skrivankova, C. Varotsos, C. Vialle, P. Viatte, V. Yushkov, C. Zerefos und P. von der Gathen, Arctic ozone loss in threshold conditions: Match observations in 1997/98 and 1998/99, *J. Geophys. Res.*, 106(D7), 7495-7504, 10.1029/2000JD900653, 2001.
- Sen, B., G. C. Toon, J.-F. Blavier, E. L. Flemming und C. H. Jackmann, Balloon-borne observations of midlatitude fluorine abundance. *J. Geophys. Res.*, 101, 9045-9054, 1996.
- Shepherd, T. G., Issues in Stratosphere-troposphere coupling, *JMSJ*, 80, 769-792, 2002 .
- Simmons A., M. Hortal, G. Kelly, A. McNally, A. Untch und S. Uppala, ECMWF analyses and forecasts of stratospheric winter polar vortex break-up: September 2002 in the SH and related events *Journal of the Atmospheric Sciences*: Vol. 62(3), doi: 10.1175/JAS-3322.1, 668-689, 2005.
- Singleton C.S., C. E. Randall, M. P. Chipperfield, S. Davies, W. Feng, R. M. Bevilacqua, K. W. Hoppel, M. D. Fromm, G. L. Manney und V. L. Harvey, 2002-2003 Arctic ozone loss deduced from POAM III satellite observations and the SLIMCAT chemical transport model, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 597-609, 2005.
- Sinnhuber B.-M., D. W. Arlander, H. Bovensmann, J. P. Burrows, M. P. Chipperfield, C.-F. Enell, U. Frieß, F. Hendrick, P. V. Johnston, R. L. Jones, K. Kreher, N. Mohamed-Tahrin, R. Müller, K. Pfeilsticker, U. Platt, J.-P. Pommereau, I. Pundt, A. Richter, A. M. South, K. K. Tørnkvist, M. Van Roozendaal, T. Wagner und F. Wittrock, Comparison of measurements and model calculations of stratospheric bromine monoxide, *J. Geophys. Res.*, 107 (D19), 4398, doi:10.1029/2001JD000940, 2002.
- Solomon, S., R. R. Garcia und A. R. Ravishankara, On the role of iodine in ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, 99, 20491-20499, 1994.
- Solomon, S., Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, *Reviews of Geophysics*, 37, 3, 275-316, 1999.

- Stimpfle, R. M., D. M. Wilmouth, R. J. Salawitch, und J. G. Anderson, First measurements of ClOOCl in the stratosphere: The coupling of ClOOCl and ClO in the Arctic polar vortex, *J. Geophys. Res.*, *109*, doi: 10.1029/2003JD003811, 2004.
- Stolarski, R. S., und R. J. Cicerone, Stratospheric chlorine: A possible sink for ozone, *Can. J. Chem.*, *52*, 1610-1615, 1974.
- Tabazadeh, A., R. P. Turoc, K. Drdla, M. Z. Jacobson und O. B. Toon, A study of type I polar stratospheric cloud formation, *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 1619-1622, 1994.
- Terao Y., Y. Sasano, H. Nakajima, H. L. Tanaka und T. Yasunari, Stratospheric ozone loss in the 1996/1997 Arctic winter: Evaluation based on multiple trajectory analysis for double-sounded air parcels by ILAS, *J. Geophys. Res.*, *107*, 8210, doi:10.1029/2001JD000615, 2002.
- Tilmes, S., R. Müller, J. U. Groöß und J. M. Russell III, Ozone loss and chlorine activation in the Arctic winters 1991-2003 derived with the TRAC method, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *4*, 2167-2238, 2004.
- Voigt, C., J. Schreiner, A. Kohlmann, P. Zink, K. Mauersberger, N. Larsen, T. Deshler, C. Kröger, J. Rosen, A. Adriani, F. Cairo, G. Di Donfrancesco, M. Viterbini, J. Ovarlez, H. Ovarlez, C. David und A. Dörnbrack, Nitric acid trihydrate (NAT) in polar stratospheric clouds, *Science*, *290*, 1756-1758, 2000.
- Volk, C. M., J. W. Elkins, D. W. Fahey, G. S. Dutton, J. M. Gilligan, M. Loewenstein, J. R. Podolske, K. R. Chan und M. R. Gunson, Evaluation of source gas lifetimes from stratospheric observations, *J. Geophys. Res.*, *102*, 25543-25564, 1997.
- von Hobe, M., J.-U. Groöß, R. Müller, S. Herchany, U. Winkler und F. Stroh, A re-evaluation of the ClO/Cl₂O₂ equilibrium constant based on stratospheric in-situ observations *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *4*, 50755102, 2004.
- von der Gathen, P., M. Rex, N. R. P. Harris, D. Lucic, B. M. Knudsen, G. O. Braathen, H. De Backer, R. Fabian, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, I. S. Mikkelsen, M. Rummukainen, J. Stähelin und C. Varotsos, Observational evidence for chemical ozone depletion over the Arctic in winter 1991-92, *Nature*, *375*, 131-134, 1995.
- Wamsley, P. R., J. W. Elkins, D. W. Fahey, G. S. Dutton, C. M. Volk, R. C. Myers, S. A. Montzka, J. H. Butler, A. D. Clarke, P. J. Fraser, L. P. Steele, M. P. Lucarelli, E. L. Atlas, S. M. Schauffler, D. R. Blake, F. S. Rowland, W. T. Sturges, J. M. Lee, S. A. Penkett, A. Engel, R. M. Stimpfle, K. R. Chan, D. K. Weisenstein, M. K. W. Ko und R. J. Salawitch, Distribution of halon-1211 in the upper troposphere and lower stratosphere and the 1994 total bromine budget, *J. Geophys. Res.*, *103*, 1513-1526, 10.1029/97JD02466, 1998.
- Wittrock, F., R. Müller, A. Richter, H. Bovensmann und J. P. Burrows, Measurements of iodine monoxide (IO) above Spitsbergen, *Geophys. Res. Lett.*, *27*, 1471-1474, 2000.
- WMO (World Meteorological Organization), *Scientific Assessment of Ozone depletion: 2002*, Global Ozone and Monitoring Project, Rep. 47, Genf, 2003.
- Wofsy, S.C., M.B. McElroy und Y.L. Young, The chemistry of atmospheric bromine, *Geophys. Res. Lett.*, *2*, 215-218, 1975.

Zhou, S.T., M. E. Gelman, A.J. Miller und J.P. McCormack, An inter-hemisphere comparison of the persistent stratospheric polar vortex, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 1123-1126, 2000.

Ich danke ...

meinem Betreuer Dr. Peter von der Gathen für das entgegengebrachte Vertrauen, die Unterstützung, die Freiheit bei der Ausfertigung und das Interesse am Fortgang dieser Arbeit.

Prof. Dr. K. Dethloff für die Möglichkeit an der Universität Potsdam zu promovieren.

Dr. M. Rex für die Einführung in die Matchtechnik, die Programme und Daten die ich übernehmen konnte und die zahlreichen Hilfestellung und Fragen vom Format bis zur Wissenschaft zu fast jeder Zeit.

Holger Deckelmann für die Einweisung in die Geheimnisse der F77- und Skriptprogrammierung, der Matchkoordinierung, der Berechnung von allen möglichen Trajektorien sowie für Unterstützung und ein offenes Ohr.

K. Frieler für die unendliche Geduld bei Problemen der Statistik und Mathematik und für die gute Zusammenarbeit und Freundschaft.

allen Operateuren an den Ozonsondenstationen, besonders Ina und Bernd, die bei jedem Wetter und zu jeder Uhrzeit raus in die Kälte gegangen sind und so diese Arbeit erst ermöglicht haben.

dem EZMW, DWD und Dr. E. Reimer für die reibungslose Bereitstellung der meteorologischen Daten im Kampagnenzeitraum.

Dr. C. Ritter für Fragen zum Satelliten und der Umlaufbahn an sich.

den Doktoranden am AWI (besonders Sabine, Jürgen, Katja, Nadja und Steffen), die meine emotionalen Ausbrüche ertrugen und anschließend noch mit mir ausgegangen sind.

allen Mitarbeitern des AWI Potsdams für die kollegiale und gute Zusammenarbeit.

der EU für die Kohle.

Dr. K. Krüger, Dr. M. Müller, J. Pöpke und Dr. C. Ritter für die große Sorgfalt und Geduld beim Korrekturlesen dieser Arbeit.

Sascha für ein Sofa und warmes Essen nachts um halb vier.

meinen Freunden und meinen Eltern, die mich immer unterstützt und es akzeptiert haben, dass ich sogar Weihnachten arbeiten wollte/durfte.

meiner Frau und meinem Sohn für das Lächeln wenn man abends nach Hause kommt und so vieles mehr...