

**Messungen von dynamischen Tracern  
und Ozon in der arktischen Stratosphäre**  
**Analyse und Interpretation flugzeuggetragener  
Submillimeterwellenmessungen**

Dissertation  
zur Erlangung des Grades  
Dr. rer. nat.  
der Universität Bremen

vorgelegt von  
Holger Bremer

Institut für Umweltphysik  
Fachbereich 1, Physik und Elektrotechnik  
Universität Bremen



# Inhaltsverzeichnis

|   |    |
|---|----|
| <b>Abstract</b>                           | 10 |
| <b>Einleitung</b>                         | 11 |
| <b>I Hintergrund und Theorie</b>          | 15 |
| <b>1 Grundlagen der Atmosphärenphysik</b> | 17 |
| 1.1 Vertikaler Aufbau                     | 17 |
| 1.2 Dynamik und Größen                    | 19 |
| 1.2.1 Barometrische Höhenformel           | 19 |
| 1.2.2 Potentielle Temperatur              | 19 |
| 1.2.3 Transport                           | 20 |
| 1.2.4 Der polarer Vortex                  | 20 |
| 1.2.5 Potentielle Wirbelstärke            | 22 |
| 1.3 Chemie der Stratosphäre               | 23 |
| 1.3.1 Der Sauerstoffzyklus                | 23 |
| 1.3.2 Katalytische Reaktionen             | 25 |
| 1.3.3 Heterogene Chemie                   | 26 |
| 1.3.4 Ozonverlust in der Arktis           | 29 |
| <b>2 Das ASUR Instrument</b>              | 31 |
| 2.1 Submillimeterradiometrie              | 31 |
| 2.1.1 Heterodynprinzip                    | 31 |
| 2.1.2 Kalibration des Atmosphärensignals  | 33 |
| 2.1.3 Systemempfindlichkeit               | 33 |
| 2.2 Instrumentenbeschreibung              | 34 |
| 2.2.1 Aufbau                              | 36 |
| 2.2.2 Frontend                            | 37 |
| 2.2.3 Backend                             | 40 |
| 2.2.4 Zusammenfassung                     | 41 |

|  |    |
|--|----|
| <b>3 Datenauswertung</b>   | 45 |
| 3.1 Elektromagnetische Strahlung   | 45 |
| 3.2 Strahlungstransfer im Submillimeterbereich                                     | 46 |
| 3.2.1 Die Strahlungstransfergleichung  | 46 |
| 3.2.2 Absorptionskoeffizient   | 47 |
| 3.2.3 Linienverbreiterung  | 48 |
| 3.2.4 Kontinuum  | 51 |
| 3.3 Inversion der Strahlungstransfergleichung                                      | 52 |
| 3.3.1 Die Inversionsmethode  | 53 |
| 3.3.2 Optimal Estimation   | 53 |
| 3.3.3 Fehleranalyse  | 54 |
| <br>   |    |
| <b>II Überblick der Kampagnen und Messungen</b>                                    | 57 |
| <br>   |    |
| <b>4 Meßkampagnen 1998/1999 und 1999/2000</b>                                      | 59 |
| 4.1 HIMSPEC I  | 59 |
| 4.1.1 Meteorologische Bedingungen  | 60 |
| 4.1.2 Kampagnenüberblick   | 62 |
| 4.2 THESEO 2000/SOLVE  | 63 |
| 4.2.1 Meteorologische Bedingungen  | 64 |
| 4.2.2 Kampagnenüberblick   | 65 |
| <br>   |    |
| <b>5 Überblick der Meßergebnisse von CH<sub>3</sub>Cl, N<sub>2</sub>O und Ozon</b> | 69 |
| 5.1 N <sub>2</sub> O   | 70 |
| 5.2 CH <sub>3</sub> Cl   | 72 |
| 5.3 Ozon   | 74 |
| 5.4 Bestimmung des Vortexrandes aus Tracer-Messungen                               | 76 |
| 5.5 Zusammenfassung  | 81 |
| <br>   |    |
| <b>6 Vergleiche mit anderen Instrumenten</b>                                       | 83 |
| 6.1 Beschreibung der Instrumente   | 83 |
| 6.1.1 Ozonsonden   | 83 |
| 6.1.2 DIAL   | 84 |
| 6.1.3 AROTEL   | 85 |
| 6.1.4 RAM  | 86 |
| 6.1.5 Mark IV  | 87 |
| 6.1.6 <i>ER-2 unified</i> N <sub>2</sub> O   | 87 |

|   |            |
|---|------------|
| INHALTSVERZEICHNIS  | 3          |
| 6.2 Vergleiche  | 88         |
| 6.2.1 Ozon  | 89         |
| 6.2.2 N <sub>2</sub> O  | 94         |
| 6.2.3 CH <sub>3</sub> Cl  | 96         |
| 6.3 Zusammenfassung   | 98         |
| <b>III Diabatisches Absinken und chemischer Ozonverlust im Winter 1999/2000</b> | <b>101</b> |
| <b>7 Diabatisches Verhalten im Winter 1999/2000</b>                             | <b>103</b> |
| 7.1 Stabilität des Vortex   | 103        |
| 7.1.1 Tracer-Tracer Korrelation   | 104        |
| 7.1.2 RDF-Rechnungen  | 106        |
| 7.1.3 Zusammenfassung   | 108        |
| 7.2 Bestimmung des diabatischen Absinkens                                       | 108        |
| 7.2.1 Aus ASUR Tracer-Messungen   | 109        |
| 7.2.2 Aus ASUR Ozonmessungen  | 112        |
| 7.3 Vergleich mit Modelldaten und Messungen                                     | 115        |
| 7.3.1 N <sub>2</sub> O Messungen  | 115        |
| 7.3.2 Heizraten   | 118        |
| 7.4 Zusammenfassung   | 121        |
| <b>8 Ozonverlust im THESEO 2000/SOLVE Winter 1999/2000</b>                      | <b>123</b> |
| 8.1 Chloraktivierung  | 123        |
| 8.2 Ozonverlust ohne dynamische Korrektur                                       | 125        |
| 8.3 Ozonverlust mit dynamischer Korrektur                                       | 129        |
| 8.3.1 Isentropen als Höhenskala   | 129        |
| 8.3.2 Diabatisches Absinken aus Heizratenberechnungen                           | 132        |
| 8.3.3 Diabatisches Absinken aus N <sub>2</sub> O-Messungen                      | 135        |
| 8.3.4 N <sub>2</sub> O Korrelation über den Vortexrand                          | 137        |
| 8.4 Diskussion der Ergebnisse   | 139        |
| <b>IV Zusammenfassung und Ausblick</b>  | <b>141</b> |
| <b>9 Zusammenfassung und Fazit</b>  | <b>143</b> |
| 9.1 Zusammenfassung der Arbeit  | 143        |
| 9.2 Fazit   | 147        |

|                                     |     |
|-------------------------------------|-----|
| <b>10 Ausblick</b>                  | 149 |
| <b>Anhang</b>                       | 151 |
| <b>Abkürzungen</b>                  | 153 |
| <b>Literaturverzeichnis</b>         | 155 |
| <b>Liste der Veröffentlichungen</b> | 165 |
| <b>Danksagung</b>                   | 171 |
| <b>Index</b>                        | 173 |

# Abbildungsverzeichnis

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 1.1 | Vertikaler Verlauf eines typischen Temperaturprofils der Atmosphäre in polaren Breiten   | 18 |
| 1.2 | Darstellung der globalen Zirkulation entnommen aus Holton et al. (1995)  | 21 |
| 1.3 | Darstellung des polaren Vortex in der Nordhemisphäre vom 17. Februar 2000 bei einer potentiellen Temperatur von 475 K                            | 23 |
| 1.4 | Globale Verteilung des Volumenmischungsverhältnisses von Ozon  | 24 |
| 1.5 | Mittelwerte von Ozonsäulen im Monat März für den Zeitraum von 1971 bis 2001  | 30 |
|     |  |    |
| 2.1 | Prinzipieller Aufbau eines „Total-Power“-Empfängers  | 32 |
| 2.2 | Das ASUR-Instrument eingebaut in der NASA DC-8 im Winter 1999/2000   | 36 |
| 2.3 | Prinzipskizze der Quasioptik, mit Kalibrationseinheit, Weglängenmodulator, Seitenbandfilter, Diplexer und Dewar                                  | 38 |
| 2.4 | Blockdiagramm der 1. und 2. Zwischenfrequenzkette  | 39 |
| 2.5 | Modellrechnung des von ASUR abgedeckten Frequenzbereiches  | 41 |
|     |  |    |
| 3.1 | Linienform der Intensitäten von Signalquellen aus drei unterschiedlichen Höhen.  | 51 |
|     |  |    |
| 4.1 | Minimumtemperaturen auf der 46 hPa Isobaren aus UKMO Analysen für die letzten 6 Winter   | 60 |
| 4.2 | Zeitserie der Fläche des polaren Vortex, sowie der Fläche mit Temperaturen unterhalb der Bildungstemperatur $T_{\text{NAT}}$ im Winter 1998/1999 | 61 |
| 4.3 | Meßflüge der <i>Falcon</i> während der HIMSPEC I Kampagne  | 62 |

|      |  |    |
|------|--|----|
| 4.4  | Zeitserie der Fläche des polaren Vortex, sowie der Fläche mit Temperaturen unterhalb der Bildungstemperatur $T_{\text{NAT}}$ im Winter 1999/2000 | 64 |
| 4.5  | Fünf ausgewählte Flugrouten der DC-8 während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne  | 66 |
| 5.1  | Entwicklung der potentiellen Wirbelstärke als Funktion der äquivalenten Breite   | 70 |
| 5.2  | Gemittelte $\text{N}_2\text{O}$ -Profile während der HIMSPEC I und der THESEO 2000/SOLVE Kampagne  | 71 |
| 5.3  | Vorwärtsrechnung, sowie ein typisches aufintegriertes Spektrum von $\text{CH}_3\text{Cl}$  | 72 |
| 5.4  | Mittlere $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Profile während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne  | 73 |
| 5.5  | Mittlere Ozonprofile während der HIMSPEC I und der THESEO 2000/SOLVE Kampagne  | 74 |
| 5.6  | Entwicklung der Ozonvolumenmischungsverhältnisse im Winter 1998/1999   | 75 |
| 5.7  | Entwicklung der Ozonvolumenmischungsverhältnisse im Winter 1999/2000   | 76 |
| 5.8  | Die $\text{N}_2\text{O}$ -Volumenmischungsverhältnisse auf der 475 K Isentrope, als Funktion der äquivalenten Breite im Winter 1998/1999         | 77 |
| 5.9  | Die $\text{N}_2\text{O}$ -Volumenmischungsverhältnisse auf der 475 K Isentrope, als Funktion der äquivalenten Breite im Winter 1999/2000         | 79 |
| 5.10 | Die $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Volumenmischungsverhältnisse auf der 475 K Isentrope, als Funktion der äquivalenten Breite im Winter 1999/2000       | 80 |
| 6.1  | ASUR Ozonprofil vom 12. Dezember 1999 über Ny-Ålesund im Vergleich zu AROTEL und einem Sondenaufstieg  | 90 |
| 6.2  | ASUR Ozonprofil vom 16. Januar 2000 über Ny-Ålesund im Vergleich zu AROTEL, DIAL, einem Sondenaufstieg und RAM                                   | 91 |
| 6.3  | ASUR Ozonprofil vom 11. März 2000 über Ny-Ålesund im Vergleich zu AROTEL, DIAL, einem Sondenaufstieg und RAM                                     | 92 |
| 6.4  | Mittelwert der Differenz aller vergleichbarer Ozonmessungen von ASUR gegenüber AROTEL, DIAL und Sondenmessungen                                  | 93 |

|   |     |
|---|-----|
| ABBILDUNGSVERZEICHNIS   | 7   |
| 6.5 Vergleich von N <sub>2</sub> O-Messungen zwischen ASUR und dem ballongetragenem Mark IV-Instrument  | 95  |
| 6.6 Vergleich von N <sub>2</sub> O-Messungen zwischen ASUR und dem vereinheitlichten ( <i>unified</i> ) Datensatz der ER-2                        | 96  |
| 6.7 Vergleich zwischen CH <sub>3</sub> Cl-Messungen von ASUR und dem ballongetragenem Mark IV-Instrument  | 97  |
| 7.1 Schematische Darstellung der Korrelation zweier Spurenstoffe innerhalb des Vortex, beziehungsweise nach einem Mischprozeß über den Vortexrand | 104 |
| 7.2 Korrelation von N <sub>2</sub> O und CH <sub>3</sub> Cl als Mittelwert der jeweiligen Meßflüge  | 105 |
| 7.3 Darstellung des Flußes von Luftmassen über den Vortexrand für den Winter 1999/2000  | 107 |
| 7.4 Entwicklung von N <sub>2</sub> O innerhalb des polaren Vortex   | 109 |
| 7.5 Entwicklung von N <sub>2</sub> O innerhalb des polaren Vortex in Abhängigkeit von der potentiellen Temperatur                                 | 110 |
| 7.6 Heizraten berechnet aus ASUR Ozonmessungen innerhalb des Vortex   | 113 |
| 7.7 N <sub>2</sub> O-Messung von Mark IV und dem vereinheitlichten ER-2 Datensatz   | 116 |
| 7.8 Entwicklung der N <sub>2</sub> O-Mischungsverhältnisse berechnet von SLIMCAT  | 117 |
| 7.9 Heizraten berechnet aus Ozonmessungen von ASUR, GOME, RAM und SLIMCAT innerhalb des Vortex  | 120 |
| 8.1 Entwicklung der Chloraktivierung im Winter 1999/2000  | 124 |
| 8.2 Entwicklung der Ozonmischungsverhältnisse innerhalb des polaren Vortex  | 126 |
| 8.3 Differenz der Mischungsverhältnisse von Ozon zwischen den einzelnen Teilkampagnen   | 127 |
| 8.4 Tagesmittelwerte von ASUR und GOME Ozonmessungen  | 131 |
| 8.5 Aus der Heizratenberechnung für ASUR gemittelte Ozonwerte   | 133 |
| 8.6 Ozon von ASUR und SLIMCAT auf der 475 K Isentrope   | 134 |
| 8.7 Tagesmittelwerte von ASUR Ozonmessungen in Abhängigkeit von N <sub>2</sub> O  | 135 |
| 8.8 Von SLIMCAT berechnetes Ozon in Abhängigkeit von N <sub>2</sub> O   | 136 |

|   |     |
|---|-----|
| 8.9 Korrelation von ASUR Ozon und N <sub>2</sub> O-Messungen über den<br>Vortexrand | 138 |
|---|-----|

# Tabellenverzeichnis

|   |     |
|---|-----|
| 2.1 Übersicht der Systemeinstellungen für die einzelnen Moleküle (Stand Dezember 1999)                          | 42  |
| 2.2 Übersicht von Frequenzen und Linienstärken der Moleküle, die während THESEO 2000/SOLVE gemessen wurden      | 43  |
| 4.1 Übersicht der Meßflüge der <i>Falcon</i> im Rahmen der HIMSPEC I Kampagne                                   | 63  |
| 4.2 Übersicht der Meßflüge der <i>DC-8</i> im Rahmen der THESEO 2000/SOLVE Kampagne                             | 67  |
| 5.1 Vergleich der Vortexrandbestimmung aus Berechnungen (nach Nash et al. (1996)) und Tracer-Messungen von ASUR | 81  |
| 7.1 Diabatisches Absinken aus ASUR N <sub>2</sub> O-Messungen in [km]   | 111 |
| 7.2 Diabatisches Absinken aus ASUR N <sub>2</sub> O-Messungen in [K]  | 112 |
| 7.3 Diabatisches Absinken berechnet aus Heizraten von ASUR Ozon-Messungen                                       | 114 |
| 7.4 Diabatisches Absinken pro Tag aus Tracer-Messungen für verschiedene Instrumente und Modellrechnungen        | 118 |
| 7.5 Diabatisches Absinken pro Tag aus Heizratenberechnungen von Ozonmessungen verschiedener Instrumente         | 121 |
| 8.1 Chemischer Ozonverlust im Winter 1999/2000  | 139 |

## Abstract

The Airborne Submillimeter Radiometer (ASUR) is a passive heterodyne instrument using a superconducting detector with an instrumental frequency range from 604.3 to 662.3 GHz. Operating onboard an aircraft to avoid absorption by tropospheric water vapor key species of the stratospheric ozone chemistry, like ClO, HCl, HNO<sub>3</sub>, and HO<sub>2</sub>, the dynamical tracers N<sub>2</sub>O and CH<sub>3</sub>Cl as well as water vapor, and ozone can be detected for a vertical altitude range from 15 to 55 km. In the winter 1999/2000 the ASUR instrument participated in the THESEO 2000/SOLVE project onboard the NASA research aircraft DC-8. Three deployments were carried out in December 1999, January 2000, and March 2000 with 23 flights total. This last winter was one of the coldest in the last 10 years with sufficiently low temperatures for PSC formation from December 1999 until March 2000. The ASUR ClO measurements show a high chlorine activation from January 2000 until the beginning of March 2000 with very low HCl values in the lower stratosphere.

To estimate the chemical ozone loss during the winter chemical and dynamical effects have to be separated. Four different methods have been applied to take diabatic descent into account: isentropes of constant potential temperature, heating rates calculated from ozone measurements, measurements of the dynamical tracer N<sub>2</sub>O, as well as correlation of ozone and N<sub>2</sub>O across the vortex edge. Also within this study diabatic descent has been calculated from ASUR N<sub>2</sub>O measurements and heating rate calculations, using ASUR ozone measurements. Finally the results have been compared to measurements performed by various instruments as well as the SLIMCAT model calculations.

An important result of these investigations is that the ozone loss estimated from heating rate calculations as well as from correlation with N<sub>2</sub>O agree very good with each other. Both methods lead to a chemical loss between 30% and 40% in the lower stratosphere. Taking ASUR's lower vertical resolution into account, these results also agree very good with sonde measurements and model calculations.

The two other methods investigated, isentropes and correlations across the vortex edge tend to underestimate respectively overestimate the chemical ozone loss in the winter 1999/2000.

# Einleitung

Der Mensch hat durch sein Handeln seit Jahrhunderten in die Kreisläufe der Natur eingegriffen. So sind z.B. in Eisbohrkernen, die im grönländischen Inlandeis gezogen wurden, erhöhte Bleiablagerungen aus der Zeit des römischen Reiches gefunden worden. In den letzten zweihundert Jahren, mit der wachsenden Weltbevölkerung und der sich rasch entwickelnden Industrie, haben sich ebenfalls die *anthropogenen* Einflüsse verstärkt.

Eine der seit Mitte der achtziger Jahren bekannte Folgeerscheinung stellt die starke Abnahme des stratosphärischen Ozons über der Antarktis im Winter dar. Die *Ozonschicht* in 20 bis 30 km Höhe absorbiert einen Teil der hochenergetischen ultravioletten Strahlung der Sonne. Dies führt so zu einem natürlichen Temperaturanstieg in diesem Höhenbereich. Änderungen im *Gesamtozon* haben daher auch einen Einfluß auf die Stratosphärentemperaturen. Die Untersuchung dieses Phänomens zeigte, daß *Fluorchlorkohlenwasserstoffe*, FCKWs, die in vielen Bereichen der Industrie (z.B. als Treibmittel) verwendet wurden, maßgeblich an dem Abbau beteiligt sind. Diese Erkenntnis führte 1987 zu der Unterzeichnung des Abkommens von Montreal, in dem sich die Industrienationen verpflichteten den Ausstoß bis 1999 auf 50% zu reduzieren. Dies war der erste Schritt, der zu einem Verbot der FCKWs in Treibmitteln in der Folgezeit führte.

Um ein besseres Verständnis für die Chemie der Stratosphäre zu gewinnen, wurden eine Vielzahl von Meßkampagnen durchgeführt. Diese erstreckten sich nicht nur auf die Antarktis, sondern führten auch in die arktische Polarregion. In der Stratosphäre der Antarktis wurde in jedem Frühling über die Jahre eine kontinuierliche Abnahme im Gesamtozon beobachtet, die mit dem *Ozonloch* endete. Hierbei handelt es sich um einen fast vollständigen Verlust des Ozons in der unteren Stratosphäre.

Die grundlegenden Reaktionsabläufe, die zum Ozonverlust führen gelten inzwischen als gut verstanden. Dies trifft zumindest auf die Antarktis zu, wo die dynamischen Verhältnisse in der Stratosphäre nur eine geringe Variation für

die verschiedenen Winter aufweisen. In der Arktis ist die Variation sehr viel größer und mit ihr verändern sich auch die Randbedingungen für die Stratosphärenchemie.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Bestimmung des chemischen Ozonverlustes, sowie des diabatischen Absinkens der Luftmassen im polaren Wirbel in dem Winter 1999/2000.

In Kapitel 1 werden im ersten Teil die für die Arbeit wichtigsten dynamischen Größen eingeführt und erläutert. Der zweite Teil gibt einen Überblick über die ungestörte und gestörte Ozonchemie der Stratosphäre.

Das Kapitel 2 behandelt das Meßinstrument ASUR, dessen technische Beschreibung und das verwendete Meßverfahren.

Das mathematische Handwerkszeug, das notwendig ist um aus den gemessenen Spektren vertikale Profile zu erzeugen wird in Kapitel 3 eingeführt.

Ein Überblick über die Meßkampagnen und die vorherrschenden meteorologischen Bedingungen wird in Kapitel 4 gegeben.

Der Überblick der Meßergebnisse in Kapitel 5 umfaßt die Moleküle Ozon,  $N_2O$  und  $CH_3Cl$ . Eine Untersuchung der ebenfalls vom ASUR-Instrument gemessenen Spurenstoffe  $ClO$ ,  $HCl$  und  $HNO_3$  ist in von König (2001) zu finden. Am Ende des Kapitels wird eine Abschätzung für den inneren und äußeren Rand des polaren Vortex aus der Korrelation von Tracer-Messungen und potentieller Temperatur gegeben. Die Ergebnisse der Abschätzung werden mit abschließend mit Analysen zur Vortexrandbestimmung verglichen.

Nachfolgend werden in Kapitel 6 Vergleiche der ASUR Messungen mit den Messungen weiterer Instrumente dargestellt. Ferner wird die Verlässlichkeit der ASUR Messungen abgeschätzt.

Kapitel 7 befaßt sich mit dem diabatischen Absinken im Winter 1999/2000. Das Kapitel beginnt mit der Diskussion der Vortexstabilität für den Meßzeitraum. Nachfolgend wird das Absinken zum Einen aus der Berechnung von Heizraten aus den Ozonmessungen und zum Anderen direkt aus  $N_2O$ -Messungen abgeschätzt. Vergleiche mit Messungen anderer Instrumente, sowie mit Modellrechnungen beenden das Kapitel.

Kapitel 8 ist der Bestimmung des chemischen Ozonverlustes im Winter 1999/2000 gewidmet. Hierbei werden vier verschiedenen Methoden näher erläutert und jeweils die Verluste bestimmt. Das diabatische Absinken aus Kapitel 7 wird in zwei der vier Methoden für eine dynamische Korrektur der Messungen verwendet. Eine Diskussion der Methoden und ihrer Ergebnisse, sowie

der Vergleiche mit weiteren Instrumenten und Modellrechnungen schließt das Kapitel ab.

Das vorletzte Kapitel (Kapitel 9) beinhaltet Zusammenfassung und Fazit der Arbeit.

Ein abschließender Ausblick über die weiteren Aktivitäten von ASUR folgt in Kapitel 10.



**Teil I**

# **Hintergrund und Theorie**



# 1 Grundlagen der Atmosphärenphysik

In diesem Kapitel werden die Grundlagen der Atmosphärenphysik kurz dargestellt. Beginnend mit dem vertikalen Aufbau der Atmosphäre werden weiterführend die vorherrschenden Transportprozesse und das Phänomen des polaren Wirbels beschrieben. Nachfolgend wird ein kurzer Abriss über die wesentlichen chemischen Prozesse gegeben, die an der Ozonproduktion und der Zerstörung beteiligt sind.

Eine ausführlichere Beschreibung des Aufbaus und der dynamischen Bedingungen in der Atmosphäre ist zum Beispiel bei Holton (1992) und Holton et al. (1995) nachzulesen.

## 1.1 Vertikaler Aufbau

Die Atmosphäre der Erde läßt sich typischerweise in zwei Bereiche einteilen, die *Homosphäre* und die *Heterosphäre*. Diese beiden Schichten unterscheiden sich grundlegend. In der Homosphäre, die sich über einen Höhenbereich vom Erdboden bis etwa 80 km Höhe erstreckt, sorgen turbulente Prozesse für eine gleichmäßige Durchmischung der Spurenstoffe. Oberhalb von 80 km, in der Heterosphäre, erfolgt die Verteilung entsprechend des molekularen Gewichtes.

Im weiteren erfolgt eine feinere Unterteilung der beiden grundlegenden Schichten, dargestellt in Abbildung 1.1.

Der sichtbare Anteil des Sonnenspektrums kann bis zum Erdboden durchdringen und führt zu seiner Erwärmung. Die Luft in der untersten Atmosphärenschicht, der *Troposphäre* wird durch die Abstrahlung des Erdbodens erwärmt. Mit zunehmender Höhe nimmt die Temperatur fast linear ab und erreicht ein Minimum in der *Tropopause*, der Grenzschicht zu der sich anschließenden *Stratosphäre*. Die Höhe der *Tropopause* variiert, abhängig von Jahreszeit und Ort zwischen 8 km, im polaren Winter und etwa 17 bis 18 km in den

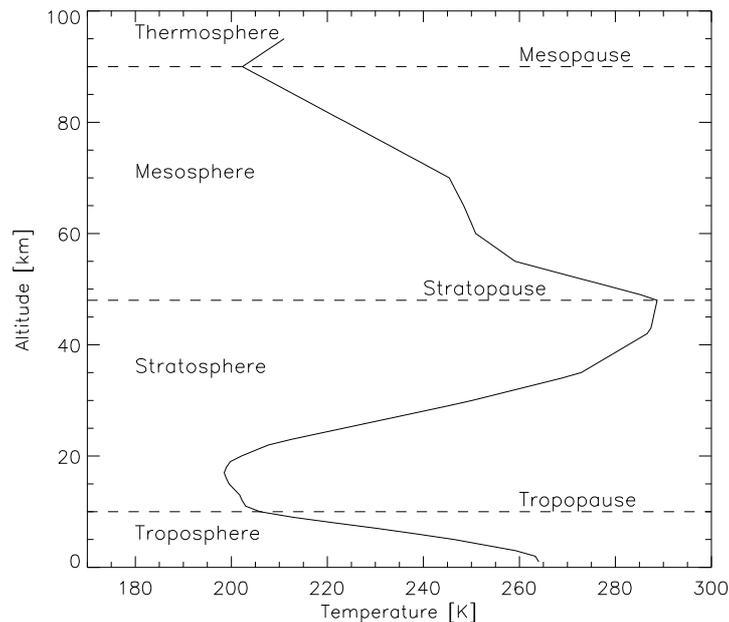


Abbildung 1.1: Vertikaler Verlauf eines typischen Temperaturprofils der Atmosphäre in polaren Breiten. Das Profil wurde aus Temperaturanalysen des *National Center for Environmental Predictions* (NCEP) für den 11. März 2000 erstellt.

Tropen. In der *Stratosphäre* wirkt die Absorption von UV-Strahlung (im Wesentlichen durch Ozon) der Strahlungskühlung entgegen und führt zu einem Ansteigen der Temperatur, die bei etwa 50 km, in der *Stratopause* ein relatives Maximum erreicht. Dieses Maximum stellt gleichzeitig die Abgrenzung zu der *Mesosphäre* dar. In der *Mesosphäre* sinkt die Temperatur wieder und findet ihr Minimum in der *Mesopause* bei etwa 80 bis 90 km Höhe, da der vorhandene Ozongehalt nicht mehr ausreicht um die Strahlungskühlung zu kompensieren. Oberhalb der *Mesopause* steigt die Temperatur ein weiteres Mal an, man spricht von der *Thermosphäre*. Der obere Bereich von *Mesosphäre* und *Thermosphäre* wird auch als *Ionosphäre* bezeichnet, da in ihr  $O_2$  und  $N_2$ -Moleküle durch kurzwellige UV-Strahlung ionisiert werden.

## 1.2 Dynamik und Größen

An dieser Stelle werden die für diese Arbeit relevanten dynamischen Größen erläutert. Desweiteren wird ein Überblick über die vorherrschenden dynamischen Verhältnisse in den polaren Wintern gegeben.

### 1.2.1 Barometrische Höhenformel

Im Gegensatz zu den komplexen Änderungen der Temperatur, nimmt der Druck mit zunehmender Höhe exponentiell ab. Dies wird in der Regel durch die nachfolgende *barometrische Höhenformel* beschrieben:

$$p(z) = p_0 \cdot \exp\left(-\int_{z(p_0)}^z \frac{1}{H(z)} dz\right). \quad (1.1)$$

$H(z)$  wird dabei als *Skalenhöhe* bezeichnet und ist wie folgt definiert:

$$H(z) = \frac{T(z) \cdot R}{M \cdot g(z)}. \quad (1.2)$$

$R$  ist die universelle Gaskonstante,  $T$  die Temperatur,  $M$  das Molargewicht des Gases und  $g(z)$  die Erdbeschleunigung. Ausgehend von der Annahme, daß sowohl Temperatur als auch Erdbeschleunigung näherungsweise konstant über die Höhe sind, entspricht  $H(z)$  dem Wert bei dem der Druck  $p$  auf  $\frac{1}{e}$  des ursprünglichen Druckes  $p_0$  abgefallen ist.

### 1.2.2 Potentielle Temperatur

Eine weitere wichtige Größe ist die *potentielle Temperatur*  $\Theta$ . Sie beschreibt die Temperatur die eine Luftmasse hat, wenn sie adiabatisch, also ohne Energieaustausch mit ihrer Umgebung auf einen Referenzdruck ( $p_0$ ) (meist den Druck am Erdboden) komprimiert wird:

$$\Theta = T \cdot \left(\frac{p_0}{p}\right)^\kappa, \quad (1.3)$$

mit  $T$  als Temperatur,  $p$  als Druck, und  $\kappa = R/c_p$ , wobei  $R$  der idealen Gaskonstanten und  $c_p$  der spezifischen Wärme von Luft entspricht. Bei Bewegun-

gen auf Adiabaten ist demzufolge die potentielle Temperatur konstant, wohingegen sich jedoch Druck und Temperatur verändern. Die Flächen gleicher potentieller Temperatur werden *Isentropen* genannt. Für Zeiträume von bis zu 10 Tagen findet in der Stratosphäre die Bewegung von Luftpaketen ausschließlich auf solchen Isentropen statt [Bauer et al. (1994); Sparling (1997)]. Daher wird häufig die *potentielle Temperatur* als Höhenskala verwendet.

### 1.2.3 Transport

Die Erdatmosphäre ist kein starres Gebilde sondern in ständiger Bewegung. Durch die erhöhte Sonneneinstrahlung in den Tropen kommt es zu einer Aufheizung des Erdbodens und der Troposphäre. Dies führt zu einem großskaligem Aufsteigen der Luftmassen in die Stratosphäre und die Mesosphäre. Der Temperaturgradient zwischen Tropen und polaren Breiten sorgt für einen Transport der stratosphärischen und mesosphärischen Luftmassen zu den Polen hin. Über den polaren Gebieten sinken die Luftmassen wieder ab und werden wieder von der Stratosphäre in die Troposphäre transportiert. Dies führt zu einem Austausch zwischen stratosphärischer und troposphärischer Luft in den polaren und subpolaren Breiten. Zur Veranschaulichung sei hier auf die schematische Darstellung in Abbildung 1.2 verwiesen.

### 1.2.4 Der polarer Vortex

Ein aus den dynamischen Vorgängen resultierendes Phänomen in der Stratosphäre ist der *polare Vortex* der sich regelmäßig über dem jeweiligen Winterpol bildet. Beim Transport entlang des Temperaturgradienten von tropischen hin zu polaren Breiten erfahren die Luftmassen eine Ablenkung aufgrund der *Corioliskraft*. Diese, aus der Erdrotation resultierende zonale Strömung überlagert die vorherrschende meridionale Zirkulation. Als Folge bildet sich ein ausgeprägtes stratosphärisches Tiefdruckgebiet über dem jeweiligen Winterpol. Innerhalb des Gebietes sinken die Luftmassen aufgrund fehlender Sonneneinstrahlung und daraus resultierender Abkühlung stark ab. Dies führt zu der Bildung eines ausgeprägten Druckgradienten, der wiederum positiv rückkoppelnd auf die meridionale und zonale Strömung wirkt. Resultierend bildet

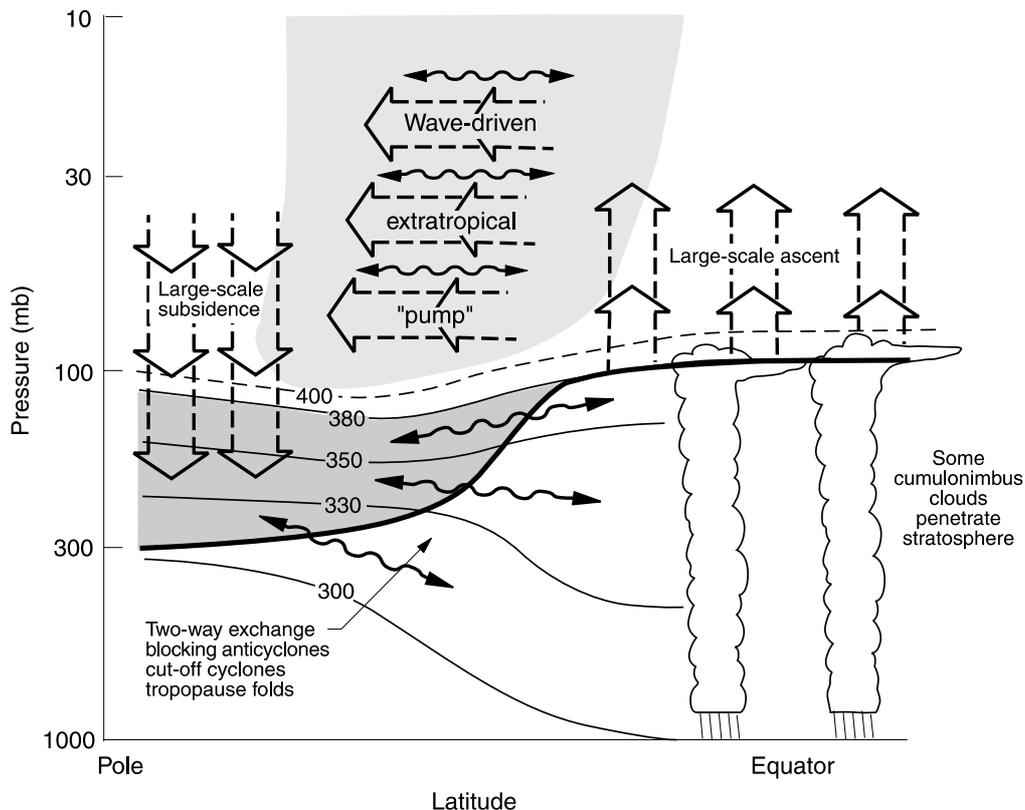


Abbildung 1.2: Darstellung der globalen Zirkulation. Die dünnen durchgezogenen Linien stellen Isentropen dar. Die dicke durchgezogene Linie symbolisiert die *Tropopause*. Der dunkelgrau schattierte Bereich beschreibt Isentropen, die sich in der unteren polaren *Stratosphäre* befinden und aus der tropischen *Troposphäre* stammen. Die Zirkulation entspricht einer *Pumpe*, die Luft aus den Tropen in polare Breiten transportiert. Die Abbildung wurde aus Holton et al. (1995) entnommen.

sich im Laufe des späten Herbstes und Winters ein Wirbel über dem Winterpol aus, der sogenannten polare Vortex. Dieser trennt Luftmassen innerhalb und außerhalb des Wirbels voneinander und verhindert weitestgehend einen Austausch mit subpolaren Luftmassen.

Die polaren Wirbel sind über der Arktis und Antarktis unterschiedlich stark ausgeprägt. Aufgrund der unterschiedlichen Topographie gestaltet sich der Wirbel in der Nordhemisphäre als anfälliger für Störungen durch planetare Wellen, die zu Verformung, Abtrennung von Vortexluft oder auch dem Auseinanderbrechen des polaren Vortex führen können. Entsprechend variiert die Lage des Zentrums, sowie die Größe des Vortex im Laufe des Winters.

Die Topographie des südlichen Polargebietes mit dem vom Wasser umgebenen

nen fast kreisförmigen antarktischen Subkontinent begünstigt die Entwicklung eines stabileren Vortex. Als Folge bedeckt er in der Regel ein größeres Gebiet und bleibt länger bestehen als in der Nordhemisphäre. Dies führt zu tieferen Temperaturen, sowie der damit verbundenen vollständigen Aktivierung der Chlor und Brom-Verbindungen und somit zu einem ausgeprägterem Ozonabbau, der in dem sich anschließendem Kapitel näher erläutert wird.

### 1.2.5 Potentielle Wirbelstärke

In diesem Zusammenhang soll an dieser Stelle mit dem Begriff der *potentiellen Wirbelstärke* (*potential vorticity*, PV) eine weiteren Erhaltungsgröße eingeführt werden. Gemäß Nash et al. (1996) ist *Ertel's potentielle Wirbelstärke* gegeben mit:

$$PV = \frac{1}{\rho}(\nabla \times v + 2\varpi)\nabla\Theta = -g(\nabla \times v + 2\varpi)_z \frac{\partial\Theta}{\partial p}. \quad (1.4)$$

Hierbei ist  $g$  die Erdbeschleunigung,  $\rho$  die Dichte,  $p$  der Druck,  $v$  das dreidimensionale Windfeld,  $\varpi$  die Winkelgeschwindigkeit der Erde und  $\Theta$  die potentielle Temperatur.  $\nabla \times v + 2\varpi$  entspricht dabei der *absoluten Wirbelstärke* als Summe aus Erdrotation und der vertikalen ( $z$ ) Komponente des rotierenden Windfeldes.

Mit Hilfe der Wirbelstärke lassen sich die Bewegungen der Luftmassen und der damit verbundenen meteorologischen Bedingungen verdeutlichen. Des weiteren erlaubt sie eine Zuordnung der Luft zu Gebieten inner- und außerhalb des polaren Vortex. Hierbei sind Gebiete innerhalb des polaren Vortex durch hohe PV-Werte gekennzeichnet. Der Rand wird in vielen Fällen über den stärksten Gradienten definiert. Nash et al. (1996) benutzt zusätzlich zum Gradientenkriterium das Maximum der Windgeschwindigkeit und unterteilt somit den Übergangsbereich in einen inneren und äußeren Rand.

Ein Beispiel für eine typische Vortexsituation in der Nordhemisphäre ist in Abbildung 1.3 dargestellt. Der helle Bereich symbolisiert den inneren Bereich des polaren Vortex. Der innere und der äußere Rand (berechnet nach Nash et al. (1996)) sind durch die durchgezogenen schwarzen Linien gekennzeichnet.

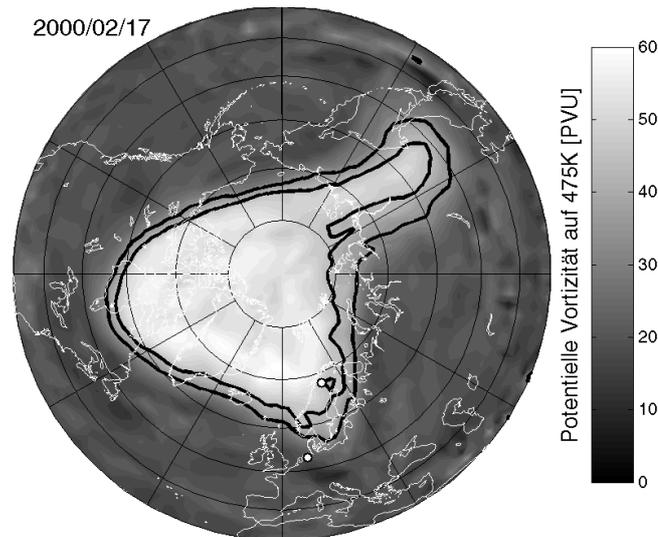


Abbildung 1.3: Darstellung des polaren Vortex in der Nordhemisphäre vom 17. Februar 2000 bei einer potentiellen Temperatur von 475 K. Farblich abgestuft ist die potentielle Wirbelstärke PV dargestellt. Der polare Vortex wird von zwei durchgezogenen schwarzen Linien umfaßt, die den inneren und den äußeren Rand kennzeichnen. Das Gebiet zwischen den beiden Linien stellt den Randbereich dar.

## 1.3 Chemie der Stratosphäre

In den folgenden Unterkapiteln wird ein Überblick über die Ozonchemie und der an ihr beteiligten Spurenstoffe und Prozesse gegeben. Für weiterführende Informationen sei auf WMO (1995) und WMO (2000) verwiesen. Eine gute Übersicht bietet ebenfalls die Arbeit von Solomon (1999).

### 1.3.1 Der Sauerstoffzyklus

Bereits im Jahre 1930 formulierte Chapman (1930) mit Hilfe eines reinen *Sauerstoffzyklusses* die grundlegenden Prinzipien der Produktion und Zerstörung von Ozon.

Die Bildung von Ozon erfolgt über die Reaktion von atomarem und molekularem Sauerstoff (Gleichungen (1.5) und (1.6)). Durch die Reaktion mit atomarem Sauerstoff oder Photodissoziation wird Ozon hingegen wieder zerstört (Gleichungen (1.7)–(1.9)). Als Stoßpartner  $M$  dienen Stickstoff- oder Sauerstoffmoleküle, die aus Gründen der Impulserhaltung notwendig sind und somit

die Reaktion erst ermöglichen.



Anhand des *Chapman-Zyklus*es und für photochemisches Gleichgewicht wäre ein Maximum der Volumenmischungsverhältnisse von Ozon in etwa 30 km Höhe in den Tropen zu erwarten. Dies spiegelt sich auch in der Temperatur wieder, da die Absorption von UV-Strahlung durch Ozon zu einem Anstieg der Temperatur in der Stratosphäre führt (Abbildung 1.1). Desweiteren sollte die

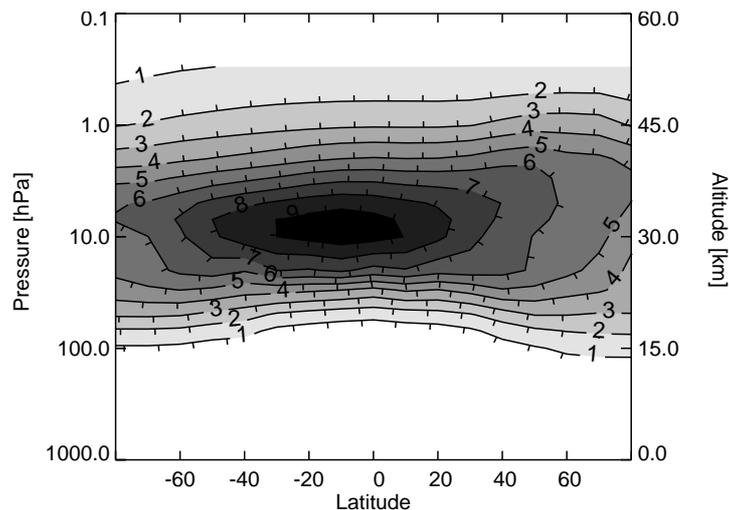


Abbildung 1.4: Die globale Verteilung des Volumenmischungsverhältnisses in [ppm] von Ozon: Dezember-Mittelwerte aus der Klimatologie von Fortuin und Kelder (1998)

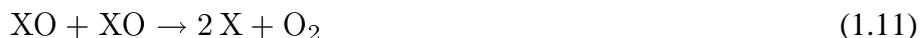
Mischungsverhältnisse zu den polaren Breiten hin abnehmen, auf Grund der geringer werdenden Sonneneinstrahlung. Die Darstellung der globalen Ozonverteilung in Abbildung 1.4 verdeutlicht, daß das Maximum der Mischungsverhältnisse zu dem Sommerpol hin verschoben ist. Auch sind die Mischungsverhältnisse in polaren Breiten unterhalb einer Höhe von 25 km höher als in den Tropen. Diese Beobachtungen sind auf die globalen Zirkulationsprozesse (siehe Kapitel 1.2.3) zurückzuführen. Durch sie wird permanent Ozon von den

Tropen in die hohen Breiten transportiert, wo die Luftmassen und somit auch das Ozon wieder absinken.

### 1.3.2 Katalytische Reaktionen

Beobachtungen und Vergleiche mit Modellrechnungen, die den reinen Chapman-Zyklus berücksichtigten, ergeben Abweichungen von bis zu 30%, um welche die Modelle die Ozonkonzentration überschätzen. Bereits im Jahre 1950 schlugen Bates und Nicolet (1950) einen katalytischen Abbauprozess vor, basierend auf der Reaktion von Ozon mit  $\text{HO}_X$  (H, OH und  $\text{HO}_2$ ). In den folgenden Jahren wurden weitere Spurenstoffe identifiziert, die ebenfalls *katalytische Reaktionen* eingehen. Besonders zu erwähnen ist hier die Arbeiten von Crutzen (1970) und von Molina und Rowland (1974). Crutzen beschrieb in seiner Arbeit den Eintrag von Stickoxidverbindungen ( $\text{NO}_X$ ) in die Stratosphäre, die maßgeblich für den Ozonabbau in der unteren Stratosphäre verantwortlich sein könnten. Die Arbeit von Molina und Rowland beschäftigte sich mit dem Einfluß von FCKWs (*Fluorchlorkohlenwasserstoffen*) auf die Ozonchemie. Sie vermuteten, daß die durch Photolyse in der Stratosphäre entstehenden Chlorradikale zu einem erheblichen Ozonverlust in der oberen Stratosphäre führen könnten. Für diese Arbeiten, die durch Untersuchungen in den 70er und 80er Jahren bestätigt wurden, erhielten 1995 Crutzen, Molina und Rowland den Nobelpreis für Chemie.

Die Gleichungen (1.10)–(1.12) beschreiben das zu Grunde liegende Reaktionsschema:



Als Katalysator X können die Spurenstoffe OH, H, NO, Cl und Br fungieren. Da der Katalysator X bei der Reaktion nicht verbraucht wird, kann jedes einzelne Molekül mehrere hundert bis tausendmal den Zyklus durchlaufen und jeweils einen Nettoabbau von einem Sauerstoffradikal und einem Ozonmolekül bewirken (Gleichung (1.13)). Gebremst wird dieser Zyklus durch Reaktionen,

bei denen der Spurenstoff X in eine inaktive Form, die sogenannten Reservoirgase überführt wird. Eine Reihe der wichtigsten Reaktionen, die zum Abbruch der katalytischen Reaktionen führen, sind:



### 1.3.3 Heterogene Chemie

1985 veröffentlichten Farman et al. (1985) Messungen von Gesamt Ozon über der Halley Bay in der Antarktis. Sie zeigten eine kontinuierliche Abnahme von Totalozon seit Mitte der 70er Jahre im antarktischen Frühling. Im darauf folgenden Jahr bestätigten Stolarski et al. (1986) diese Ergebnisse durch Messungen des Satelliteninstrumentes TOMS. Beobachtungen der folgenden Jahre zeigten ein Anwachsen der betroffenen Fläche, sowie eine fortwährende Abnahme im Totalozon von Jahr zu Jahr. Sondenmessungen zeigten, daß sich in einem Höhenbereich von 18 bis 24 km, dem Bereich in dem sich die maximale Ozonkonzentration befindet (oft auch als Ozonschicht bezeichnet), praktisch kein Ozon mehr vorhanden war. Diese Vorgänge ließen sich nicht mit der reinen Gasphasenchemie erklären.

Wie bereits in Kapitel 1.2.4 beschrieben wurde, bildet sich im Herbst mit zunehmender Dunkelheit, in der Polarregion ein stratosphärisches Tiefdruckgebiet aus, der sogenannte polare Vortex. Durch die Isolation der Luftmassen innerhalb des Wirbels und das Fehlen von Sonneneinstrahlung können extrem tiefe Temperaturen auftreten. Dies wiederum begünstigt die Bildung sogenannter polarer stratosphärischer Wolken, PSCs (*Polar Stratospheric Clouds*) in der unteren Stratosphäre. Gegenwärtig wird zwischen drei PSC-Arten unterschieden: Typ Ia, Ib und II.

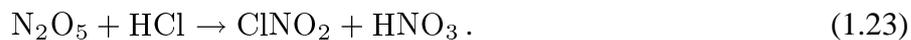
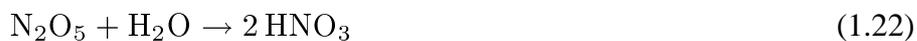
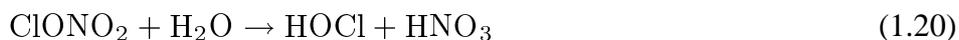
Typ Ia besteht aus einem in der Stratosphäre thermodynamisch stabilem Kondensat der Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ): NAT. Der thermodynamische Siedepunkt von Salpetersäuretrihydrat (*nitric acid trihydrate*, NAT) ist bei einer

Temperaturen von 195 K für einen Druck von 50 hPa (auch oft als  $T_{\text{NAT}}$  bezeichnet). Ursprünglich wurde davon ausgegangen, daß sich für Temperaturen kleiner  $T_{\text{NAT}}$  NAT bildet, doch wurde dies durch Messungen nicht bestätigt. Statt dessen wurden andere flüssige Partikel beobachtet. Modellrechnungen legen nahe, daß es sich hierbei um stark unterkühlte ternäre Lösungen von  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und Wasser handelt, sogenannte *supercooled ternary solution* (STS), die als Typ Ib bezeichnet werden.

Typ II besteht aus Eiskristallen, die einen thermodynamischen Siedepunkt bei einer Temperatur von 190 K ( $T_{\text{Eis}}$ ) und einem Druck von 50 hPa haben.

Detailliertere und weiterführende Beschreibungen sind zum Beispiel in Carslaw et al. (1997), Hansen und Hoppe (1997), Koop et al. (1997) und Peter (1997) gegeben.

Die heterogenen Reaktionen auf den Oberflächen der PSCs laufen um ein vielfaches schneller ab als reine Gasphasenreaktionen und führen unter anderem zu einer Freisetzung von photolysierbaren Chlormolekülen aus den Reservoirgasen HCl und ClONO<sub>2</sub>, der sogenannten *Chloraktivierung* (Gleichungen (1.19)–(1.21)):



Ein weiterer Effekt heterogener Reaktionen ist die Überführung der aktiven Stickstoffverbindungen  $\text{NO}_x$  in Salpeteräure (Gleichungen (1.19) und (1.20) sowie Gleichungen (1.22) und (1.23)), die wiederum in PSCs gebunden und dadurch aus der Gasphase entfernt wird (*Denoxifizierung*). So lange nun die PSCs Bestand haben, wird durch das Fehlen der Stickstoffverbindungen die Gleichung (1.17) und damit eine Chlordeaktivierung unterbunden. Bestehen die PSCs über einen hinreichend langen Zeitraum, kann ein Absinken der PSCs dazu führen, daß aus bestimmten Höhenbereichen alle Stickstoffverbindungen entfernt werden, sogenannte *Denitrifizierung*. Dies hat eine lang anhaltende Chloraktivierung und damit einen lang anhaltenden Ozonabbau zur Folge, da sich Chlor nur langsam in die Reservoir zurückbildet (Gleichungen (1.14)–(1.17)).

In Folge der heterogenen Reaktionen liegt Chlor in den leicht photolysier-

baren Verbindungen  $\text{Cl}_2$  und  $\text{HOCl}$  vor und bildet ab Mitte des Winters, wenn die Sonnenstrahlung den polaren Vortex erreicht, Chlorradikale:



Der katalytische Chlorzyklus (Gleichungen (1.10) und (1.11)) hat, da auf Grund des großen Sonnenzenitwinkels im Winter in polaren Breiten nur wenig atomarer Sauerstoff gebildet wird, nur einen geringen Anteil am Ozonabbau. Der wesentliche Mechanismus ist der zuerst von Molina und Molina (1987) vorgeschlagene ClO-Dimer Zyklus, auf Grund der vorherrschenden tiefen Temperaturen und hohen Chlorkonzentrationen in der unteren Stratosphäre:



Bei Sonnenaufgang wird der Dimer  $\text{Cl}_2\text{O}_2$  photolysiert (Gleichung (1.28)) und es bilden sich Chlorradikale. Der begrenzende Reaktionsschritt ist Gleichung (1.27), doch auf Grund der hohen Reaktionsgeschwindigkeit von Gleichung (1.26), sowie Gleichungen (1.28) und (1.29) ist das Gleichgewicht weit zu der Bildung des ClO-Monomers verschoben. In der Nacht ist das Gleichgewicht hingegen zum Dimer  $\text{Cl}_2\text{O}_2$  hin verschoben. Dieser Zyklus ist ein Kennzeichen für die sich bei Tageslicht aufbauende Chlorschicht in der unteren Stratosphäre im polaren Wirbel.

Eine weitere wichtige Rolle im Ozonabbau spielt der ClO-BrO-Zyklus (Gleichungen (1.31)–(1.36)). McElroy et al. (1986) gaben den Beitrag dieses Zykluses mit etwa 5% bis 10%. Neuere Untersuchungen von Chipperfield und Pyle (1998) schätzen den Anteil am Ozonabbau auf über 50%. Die um den Faktor 100 gegenüber Chlor geringere Konzentration von Brom in der Stratosphäre wird durch die sehr viel höhere Reaktionsgeschwindigkeit ausge-

glichen:



### 1.3.4 Ozonverlust in der Arktis

Nach der Entdeckung des antarktischen „Ozonlochs“ im Jahre 1985 schrieben Farman et al. (1985):

„...comparable effects should not be expected in the northern hemisphere...“

Diese Aussage hat sich im letzten Jahrzehnt als Trugschluß herausgestellt. Messungen des Gesamtozons zeigen auch in der Arktis einen negativen Trend seit dem Januar 1989, der jedoch von den sehr warmen Wintern 1997/98 und 1999/99 unterbrochen wurde. In Abbildung 1.5 ist dieser Trend, für den Monat März im Zeitraum von 1971 bis 2001 wiedergegeben (aus Newman und Harris (2001)). Der Ozonverlust ist jedoch geringer als in der Antarktis. Dies ist auf die im Schnitt höheren Temperaturen und Störungen des arktischen Wirbels zurückzuführen, die sich negativ auf PSC-Bildung und Lebensdauer auswirken und somit eine großflächige Denitrifizierung und die damit verbundenen Folgen unterbindet.

Um zu einem besseren Verständnis der chemischen und dynamischen Prozesse zu gelangen, wurden seit Anfang der 90er Jahre regelmäßig großangelegte europäische Meßkampagnen durchgeführt, wie EASOE (*European Arctic Stratospheric Ozone Experiment*) im Winter 1991/1992, SESAME (*Second European Stratospheric Arctic and Midlatitude Experiment*) in den Jahren 1993 bis 1995 und THESEO (*Third European Stratospheric Experiment on Ozone*) in den Wintern 1997/1998 sowie 1998/1999. Im Winter 1999/2000 erfolgte in europäisch-amerikanischer Kooperation eine der größten Meßkampagnen

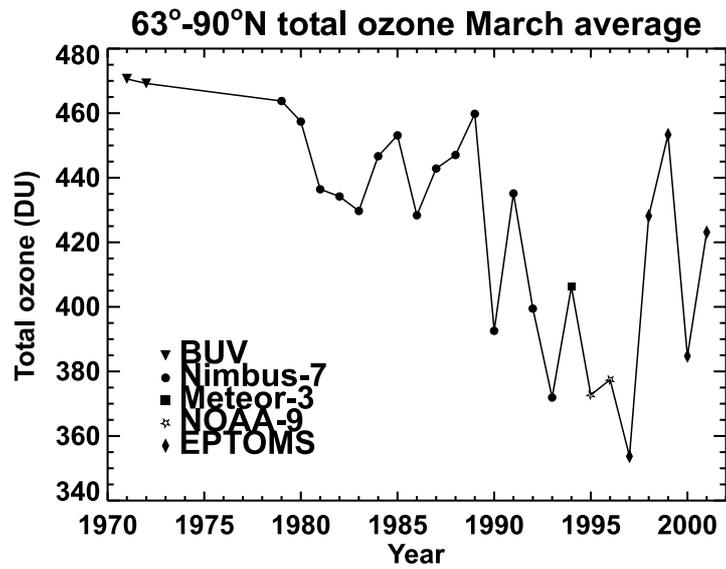


Abbildung 1.5: Mittelwerte von Ozonsäulen im Monat März, gemessen zwischen 63° und 90° nördlicher Breite, im Zeitraum von 1971 bis 2001 (entnommen aus Newman und Harris (2001)).

überhaupt, THESEO 2000/ SOLVE (SAGE (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*) III *Ozone Loss and Validation Campaign*).

Auf Messungen, die im Rahmen von THESEO und THESEO 2000/SOLVE durchgeführt wurden, basieren die Ergebnisse diese Arbeit.

## 2 Das ASUR Instrument

In diesem Kapitel wird eine Einführung in die passive Submillimeterradiometrie gegeben, sowie deren wichtigsten Prinzipien dargestellt. Nachfolgend erfolgt eine Beschreibung des *Airborne SUBmillimeter Radiometers* ASUR.

### 2.1 Submillimeterradiometrie

In der atmosphärischen Fernerkundung kommen in Abhängigkeit vom beobachteten Wellenlängenbereich unterschiedliche Meßverfahren zum Einsatz. Dabei wird zwischen kohärenten und inkohärenten Techniken unterschieden.

Bei der inkohärenten Technik wird die einfallende Strahlungsleistung direkt detektiert. Dieses Verfahren wird im sichtbaren, ultravioletten, nah-infraroten bis hin zum submillimeter Spektralbereich angewendet. Hierbei wird das einfallende Signal mittels Gitter spektral zerlegt und von breitbandigen Detektoren oder auch Diodenarraydetektoren aufgenommen.

Im Gegensatz zur inkohärenten Technik wird bei der kohärenten Technik die Leistung nicht direkt detektiert. Das Signal wird hingegen auf eine niedrigere Frequenz umgesetzt, wobei die spektrale Information erhalten bleibt. Dieses Verfahren wird als Heterodynprinzip bezeichnet. Die nachfolgend notwendige Verstärkung und Filterung des Signals kann nun mit handelsüblichen Komponenten erfolgen.

#### 2.1.1 Heterodynprinzip

Beim Heterodynprinzip wird das empfangene Atmosphärensignal  $\nu_{Signal}$  mit einem frequenzstabilen Lokaloszillatorsignal  $\nu_{LO}$  überlagert. In einem Mischer, zum Beispiel einer Diode mit nichtlinearer Strom-Spannungs-

kennlinie werden die beiden Signale auf die Zwischenfrequenz  $\nu_{ZF}$  umgesetzt. Dabei bleibt die spektrale Information des Signals erhalten:

$$\nu_{ZF} = | \nu_{LO} - \nu_{Signal} | . \quad (2.1)$$

Bei der Umsetzung auf die Zwischenfrequenz werden zwei Mischprodukte erzeugt: das untere (*lower sideband, lsb*) und das obere Seitenband (*upper sideband, usb*):

$$\nu_{lsb} = \nu_{LO} - \nu_{ZF} , \nu_{usb} = \nu_{LO} + \nu_{ZF} . \quad (2.2)$$

Instrumente, bei denen beide Bänder mit der gleichen Effizienz umgesetzt werden, arbeiten im sogenannten *Doppelseitenband*-Betrieb. Dabei stellt das detektierte Spektrum eine Überlagerung der Signale beider Bänder dar. Dies kann jedoch auch zu einer unerwünschten Überlagerung von Emissionslinien führen. Um dies zu umgehen wird mit Hilfe eines Filters eines der beiden Bänder unterdrückt. Die gewünschte Emissionslinie befindet sich dabei im *Signalband*, während das unerwünschte Seitenband, das *Spiegelband*, unterdrückt wird. Ein so betriebener Empfänger arbeitet im *Einseitenband*-Modus.

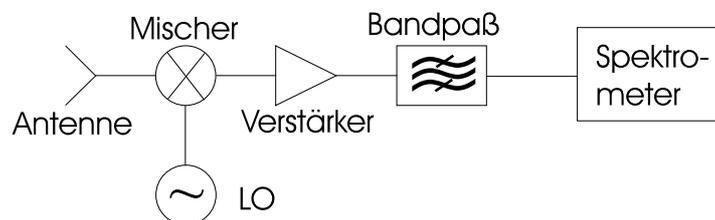


Abbildung 2.1: Prinzipieller Aufbau eines *Total-Power*-Empfängers (aus Bremer (1997))

Das Ziel des Mischprozesses und möglicher weiterer Mischprozesse ist die rauscharme Verstärkung und Detektion des atmosphärischen Signals mit konventionell erhältlichen Bauteilen. Desweiteren wird die Anpassung an die Eingangsfrequenz unterschiedlicher Detektoren ermöglicht, ohne jeweils den Detektor anpassen zu müssen.

In Abbildung 2.1 ist der prinzipielle Aufbau eines *Total-Power*-Empfängers dargestellt.

### 2.1.2 Kalibration des Atmosphärensignals

Die gemessene Leistung  $P$  eines Heterodynempfängers setzt sich aus der thermischen Rauschleistung der Atmosphärensignale  $P_{ant}$  und der Summe der Rauschleistungen der Empfängerkomponenten  $P_{sys}$  zusammen. Wobei die Rauschleistung der Atmosphäre die Summe von thermischer Eigenemission der Spurenstoffe und atmosphärischer Hintergrundstrahlung ist:

$$P = P_{ant} + P_{sys}. \quad (2.3)$$

Nach dem Nyquist-Theorem und mit Hilfe der Rayleigh-Jeans-Näherung ergibt sich ein direkter Zusammenhang zwischen Rauschleistung und Rauschtemperatur, mit:

$$P = k_B \cdot T \cdot \Delta\nu. \quad (2.4)$$

Mit der Rauschleistung  $P$ , der Rauschtemperatur  $T$ , der Boltzmann-Konstante  $k_B$ , sowie der Frequenzbandbreite  $\Delta\nu$ .

Um die gewünschte Strahlungsleistung der Atmosphäre zu erhalten, müssen nun Signal und Systemrauschen getrennt werden. Nach dem Planckschen Strahlungsgesetz gilt für die Strahlungsleistung schwarzer Körper im thermodynamischen Gleichgewicht der folgende Zusammenhang:

$$B_\nu(T) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \frac{1}{e^{\frac{h\nu}{k_B T}} - 1}, \quad (2.5)$$

mit dem Planckschen Wirkungsquantum  $h$ , der Frequenz  $\nu$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , der Boltzmann-Konstante  $k_B$  und der physikalischen Temperatur  $T$ . Durch die Messung der Strahlungsleistungen  $P_{hot}$  und  $P_{cold}$  zweier schwarzer Körper mit bekannten Temperaturen wird eine Kalibration durchgeführt. Mit Hilfe der Temperaturen  $T_{hot}$  und  $T_{cold}$  der beiden bekannten schwarzen Körpern ergibt sich für die gemessene Atmosphärentemperatur:

$$T_A = T_{cold} + (P - P_{cold}) \cdot \frac{T_{hot} - T_{cold}}{P_{hot} - P_{cold}}, \quad (2.6)$$

mit  $P$  als Leistung des Atmosphärensignals.

### 2.1.3 Systemempfindlichkeit

Das Geräteeigenrauschen setzt sich wiederum aus den Rauschtemperaturen der einzelnen Gerätekomponenten zusammen, wobei nach der Beziehung von

Kraus (1966) gilt:

$$T_{sys} = T_{Mischer} + L \cdot T_{ZF}, \quad (2.7)$$

mit der Systemrauschtemperatur  $T_{sys}$ , den Rauschtemperaturen von Mischer  $T_{Mischer}$ , der Zwischenfrequenzkomponente  $T_{ZF}$  und dem Konversionsverlust am Mischer  $L$ . Die Rauschbeiträge der einzelnen Komponenten sind unterschiedlich groß. Im Wesentlichen tragen nur die ersten Systemkomponenten zu dem Systemrauschen bei, da nachfolgende Komponenten jeweils mit dem Konversionsverlust der vorherigen Komponente multipliziert werden (Vowinkel (1988)).

Die Empfindlichkeit des Systems wird häufig mit der *Y-Faktor* Methode bestimmt, bei der das Verhältnis der abgestrahlten Leistungen ( $P_{sys}^{hot}$  und  $P_{sys}^{cold}$ ) zweier Kalibrationsschwarzkörper mit unterschiedlicher Rauschtemperatur gemessen wird:

$$Y = \frac{P_{sys}^{hot}}{P_{sys}^{cold}}. \quad (2.8)$$

Mit dem Y-Faktor und dem Zusammenhang aus (2.4) kann die Systemrauschtemperatur bestimmt werden zu:

$$T_{sys} = \frac{T_{ant}^{hot} - Y \cdot T_{ant}^{cold}}{Y - 1}. \quad (2.9)$$

Die Grenzempfindlichkeit  $\Delta T_A$  des Systems berechnet sich aus der Systemrauschtemperatur  $T_{sys}$ , für eine gegebene Integrationszeit  $\tau$  und Frequenzbandbreite  $\Delta\nu$  mit Hilfe der Radiometerformel:

$$\Delta T_A = \frac{K \cdot T_{sys}}{\sqrt{\Delta\nu \cdot \tau}}. \quad (2.10)$$

Der Faktor  $K$  ist eine Konstante die durch den jeweiligen Empfängertyp bestimmt wird. Für *Total-Power*-Empfänger ist  $K = 1$ . Des weiteren kann aus (2.10) abgeleitet werden, daß eine Halbierung der Systemrauschtemperatur eine Verkürzung der Integrationszeit um den Faktor 4 zur Folge hat, bei gleichbleibender Grenzempfindlichkeit.

## 2.2 Instrumentenbeschreibung

Das ASUR-Instrument ist ein flugzeuggetragenes Radiometer, das passive Strahlung im Submillimeterwellenlängenbereich detektieren kann, die durch

thermisch angeregte molekulare Rotationsübergänge erzeugt wird. Der Meßbereich erstreckt sich auf einen Frequenzbereich von 604,3 bis 662,3 GHz. Dieser Bereich enthält Signaturen einiger wesentlicher Spurenstoffe, die an der stratosphärischen Ozonchemie beteiligt sind, wie HCl, ClO, HNO<sub>3</sub> und Ozon selbst. Des weiteren werden Übergänge von den chemisch inerten Molekülen N<sub>2</sub>O, CH<sub>3</sub>Cl und Wasserdampf, sowie schwächere Signale von HO<sub>2</sub>, BrO und HOCl abgedeckt. Die Signale werden unter einem Zenitwinkel von 78° aufgenommen. Im ASUR Frequenzbereich wird die Strahlung stark von Wasserdampf absorbiert. Da Wasserdampf hauptsächlich in der Troposphäre ist, wird das ASUR-Instrument auf einem Flugzeug, bei einer Flughöhe von 10 km oder höher betrieben. Aus der Druckverbreiterung der gemessenen Emissionslinien können vertikale Profile über einen Höhenbereich von 15 bis 50 km, mit einer vertikalen Auflösung von 6 bis 12 km bestimmt werden.

Seit der ersten Meßkampagne im Winter 1991, im Rahmen des EASOE-Projektes, hat das ASUR-Instrument an allen größeren europäischen, arktischen Meßkampagnen teilgenommen. Als Plattform diente bisher das Forschungsflugzeug *Falcon* des DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt). Bei der letzten Meßkampagne im Winter 1999/2000, im Rahmen des europäisch-amerikanischen THESEO 2000/SOLVE Projektes war ASUR erstmals auf der NASA *DC-8* eingebaut. Ein Überblick über die Teilnahme an den einzelnen Kampagnen ist zum Beispiel in von König (2001) zu finden.

In all den Jahren wurde das Instrument kontinuierlich weiterentwickelt und verbessert. So hat der Einbau eines mit flüssigem Helium gekühlten Mischers zu einer Verbesserung der Rauschtemperatur von ursprünglich 12000 K auf 550 bis 1500 K geführt. Dies bedeutet eine Verkürzung der Meßzeit um etwa einen Faktor 100 bei gleicher Empfindlichkeit. Des weiteren wurde der Frequenzbereich von ursprünglich zwei Frequenzfenstern im Bereich von 620 bis 650 GHz auf die heutigen kontinuierlich erreichbaren 604,3 bis 662,3 GHz erweitert. Ausführliche Beschreibung der vergangenen Kampagnen und der Instrumentenentwicklung sind in Crewell (1993), Mees et al. (1995), Urban (1997), Bremer (1997) und von König et al. (2000) nachzulesen.

### 2.2.1 Aufbau

In Abbildung 2.2 ist das ASUR-Instrument bei seiner bisher letzten Kampagne, eingebaut in die NASA DC-8 dargestellt. In der linken Bildhälfte ist das sogenannte *frontend* zu sehen, in dem sich die Kalibrationseinheiten, optische Komponenten, der Mischer, sowie die dazugehörige Elektronik befinden. Das Rack auf der rechten Bildhälfte wird als *backend* bezeichnet und beinhaltet im Wesentlichen das Spektrometer, sowie einen Computer, der zur Aufzeichnung und Überwachung der Messungen genutzt wird.



Abbildung 2.2: Das ASUR-Instrument eingebaut in die NASA DC-8 im Winter 1999/2000. Auf der linken Seite ist das *frontend*, auf der rechten Seite das *backend* zu sehen.

Die Signale gelangen durch ein Fenster aus *High Density Polyethylen* zum Instrument. Das Fenster wird an Stelle eines normalen Flugzeugfensters eingesetzt und erlaubt auf Grund seiner Größe und des Abstandes des *frontends* zum Fenster mögliche Elevationswinkel zwischen  $5,5^\circ$  und  $19,8^\circ$ , was einem Zenitwinkelbereich von  $70,2^\circ$  bis  $80,5^\circ$  entspricht. Die Racks sind zur Dämpfung

von Vibrationen und Stößen auf *Shockmounts* montiert. Die Befestigung im Flugzeug erfolgt auf den Sitzschienen, die normalerweise für die Befestigung der Passagiersitze genutzt werden.

### 2.2.2 Frontend

Das Atmosphärensignal wird vom Fenster aus über einen drehbaren Spiegel in die Quasioptik eingekoppelt. Der drehbare Spiegel ermöglicht die automatische Korrektur des Rollwinkels des Flugzeuges innerhalb geringer Winkelbereiche, um so eine Beobachtung unter einem konstanten Einfallswinkel zu gewährleisten. Des Weiteren erfolgt über den Drehspiegel die Kalibration des Atmosphärensignals. Der Meßzyklus gliedert sich wie folgt:

*cold* → Antenne → *hot* → Antenne → *cold* → ...

Der Spiegel verharrt jeweils 2 Sekunden in jeder Einstellung, so daß ein vollständiger Zyklus nach 8 Sekunden durchlaufen ist. Die „kalte Last“ mit *cold load* bezeichnet, besteht aus einem offenen Behälter, der mit einem Absorbermaterial ausgekleidet und mit flüssigem Stickstoff gefüllt ist. Der flüssige Stickstoff strahlt mit einer Siedepunkt-Temperatur von etwa 77,8 K. Die „warme Last“, oder auch *hot load* besteht aus Absorbermaterial, das bei Raumtemperatur abstrahlt. Parallel werden die Temperaturen von „warmer“ und „kalter Last“ mit Hilfe von Temperaturfühlern aufgezeichnet, da sie auf Grund von Druckschwankungen, sowie Änderungen in der Raumtemperatur (der Temperatur in der Flugzeugkabine) variieren können.

Die Signale von Antenne, kalter und warmer Last werden vom Drehspiegel in die *Quasioptik* gelenkt. Durch die zunehmende Strahlaufweitung bei niedrigeren Frequenzen ist die geometrische Optik nicht mehr anwendbar. Dies gilt für Bereiche, in denen der Strahldurchmesser kleiner wird als das hundertfache der Wellenlänge Klein (1993). Bei den von ASUR gemessenen Wellenlängen von etwa 0,5 mm (entsprechend 600 GHz) ergibt sich somit eine Apparatur von etwa 50 mm. Es wird statt dessen eine Quasioptik verwendet, die von einer gaußförmigen Intensitätsverteilung der Strahlung ausgeht (Goldsmith (1982)). In Abbildung 2.3 ist der prinzipielle Aufbau der verwendeten Quasioptik wiedergegeben.

Die eingekoppelten Signale durchlaufen zu Beginn einen Weglängenmodulator, der für eine „Verschmierung“ möglicher Stehwellen zwischen Ka-

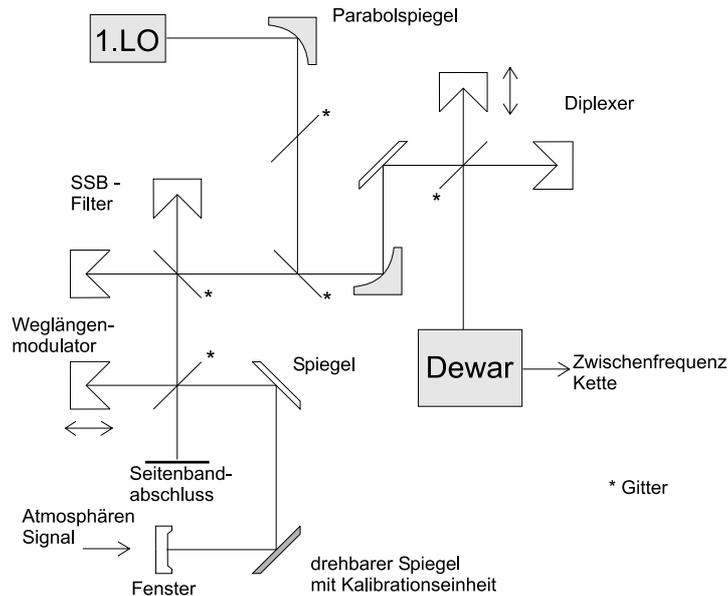


Abbildung 2.3: Prinzipskizze der Quasioptik, mit Kalibrationseinheit, Weglängenmodulator, Seitenbandfilter, Diplexer und Dewar (aus Bremer (1997)).

librationseinheit und Fenster sorgt. Nachfolgend sind zwei *Martin-Puplett-Interferometer* (Martin und Puplett (1969)) angebracht. Im ersten Interferometer, welches auch als *Seitenbandfilter* bezeichnet wird, erfolgt die Unterdrückung eines der beiden Seitenbänder. Hierzu werden die beiden Signalbänder unterschiedlich polarisiert und das unerwünschte Signalband mittels eines Gitters auf ein Absorbermaterial umgelenkt. Im zweiten Interferometer, dem *Diplexer*, erfolgt die Überlagerung des Signals des ersten *Lokaloszillators* mit dem Atmosphärensignal.

Das Signal wird anschließend durch eine Linse auf den Empfänger fokussiert, der sich im *Dewar* befindet. Als Empfänger wird eine SIS-Tunneldiode verwendet, die sich durch niedrigere Rauschtemperaturen gegenüber *Schottky-Mischern* auszeichnet. Die SIS-Diode, sowie ihre Vorgänger wurden von der *Space Research Organisation of the Netherlands* (SRON) entwickelt und werden seit 1995 verwendet. Für weitere Ausführungen und eine genauere Beschreibung der SIS-Dioden sei hier auf Mees et al. (1995) verwiesen. Neben der Diode befindet sich auch der erste Verstärker im *Dewar*. Der *Dewar* ist mit flüssigem Stickstoff und flüssigem Helium gefüllt, wobei die einzelnen Kammern durch Vakuum voneinander getrennt sind. Die Komponenten sind auf der Bodenplatte des Heliumtanks angebracht und werden somit auf eine Tem-

peratur von etwa 4.2 K gekühlt. Die Temperatur kann bei Bedarf noch weiter auf 2,7 K abgesenkt werden, indem der Druck über dem Heliumbad verringert wird. Dies hat zwar eine Verbesserung der Empfindlichkeit des Systems zur Folge, doch verkürzt sich die Stand- und somit die Meßzeit des Instrumentes von gewöhnlich etwa 10 bis 11 Stunden auf etwa fünf Stunden.

Das System aus Mischer, 1. Lokaloszillator, Verstärker und dem nachfolgenden Bandpaß wird als 1. Zwischenfrequenzkette (1. ZF) bezeichnet und stellt die erste Stufe von insgesamt drei Frequenzumsetzungen dar, in denen die Signale von den ursprünglich etwa 650 GHz auf 2,3 GHz, die Eingangsfrequenz des Spektrometers heruntergemischt werden. Nachfolgend sind Eingangs- und Endfrequenz der einzelnen Zwischenfrequenzketten dargestellt:

$$\begin{aligned} \text{Signal} &\xrightarrow{\approx 650 \text{ GHz}} \xrightarrow{1. \text{ ZF}} 11,4 \pm 2,25 \text{ GHz} \xrightarrow{2. \text{ ZF}} \dots \\ &\dots 3,7 \pm 1,0 \text{ GHz} \xrightarrow{3. \text{ ZF}} 2,3 \pm 0,8 \text{ GHz} \xrightarrow{\text{Spektrometer}} \end{aligned}$$

Des Weiteren ist zur Veranschaulichung in Abbildung 2.4 ein Blockdiagramm der ersten und zweiten Zwischenfrequenzkette des ASUR-Instrumentes dargestellt.

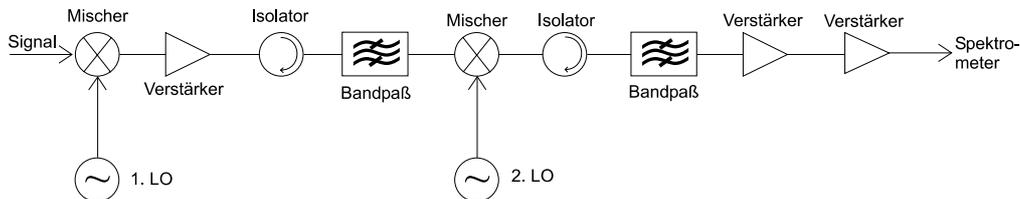


Abbildung 2.4: Blockdiagramm der 1. und 2. Zwischenfrequenzkette

Als *Lokaloszillator* wird in der ersten Zwischenfrequenzkette ein *Gunn-Oszillator* verwendet, der mittels einer *Phase-Locked-Loop* (PLL) Schaltung frequenzstabilisiert wird. Seit 1998 wird ein Oszillator verwendet, der einen Arbeitsbereich von 102,3 bis 108,3 GHz aufweist. Hierzu wird eine, von einem Synthesizer erzeugte Frequenz von etwa 100 MHz in einem Ferranti-Oszillator um den Faktor 90 vervielfacht, bevor sie in den *Gunn-Oszillator* eingespeist wird, wo eine weitere Vervielfachung um den Faktor 12 stattfindet. Es erfolgt eine weitere Verdoppelung und Verdreifachung der Frequenz, wodurch eine Lokaloszillatorfrequenz in einem Bereich von 616,8 bis 649,8 GHz erreicht wird. Siehe hierzu auch Gleichungen (2.11) und (2.12):

$$\nu_{Gunn} = \nu_{ref} \cdot 90 \cdot 12 + \nu_{ZF,PLL}, \quad (2.11)$$

$$\nu_{LO} = \nu_{Gunn} \cdot 2 \cdot 3. \quad (2.12)$$

$\nu_{ref}$  ist das vom Synthesizer erzeugte Signal von etwa 100 MHz.  $\nu_{ZF,PLL}$  ist ein Referenzsignal von 100 MHz, das in der PLL stabilisiert wird und womit wiederum der Gunn-Oszillator ( $\nu_{Gunn}$ ) frequenzstabilisiert wird.  $\nu_{LO}$  ist das eigentliche Lokaloszillatorsignal.

### 2.2.3 Backend

Die erste und zweite Zwischenfrequenz wird im *frontend* erzeugt mit einer Endfrequenz von  $3,7 \pm 1,0$  GHz. Diese Frequenz hat „historische“ Gründe. Das ASUR *backend* wurde in den vergangenen Jahren auch zusammen mit anderen *frontends* genutzt. So wurde in diesem Zusammenhang im Jahre 1994 das OH-Radiometer des DLR betrieben, das bei einer Frequenz von 2,5 THz arbeitet (siehe hierzu Urban (1997)). Des Weiteren wurde ein 500 GHz Radiometer des *Rutherford Appleton Laboratory* (RAL) verwendet, unter anderem im Rahmen von HIMSPEC II (*High- and Midlatitude Speciation of Chlorine and Nitrogen Families*) im Frühjahr 1999, das speziell auf die Messungen von BrO optimiert ist.

Die wesentlichen Komponenten im *backend* sind neben der dritten Zwischenfrequenzkette die Computereinheit, sowie ein *Akusto-optisches-Spektrometer* (AOS). In der Zwischenfrequenzkette wird das eingehende Signal von  $3,7 \pm 1,0$  GHz auf die Eingangsfrequenz des AOS, von  $2,3 \pm 0,8$  GHz heruntergemischt und der Leistungspegel angepaßt.

Die eingehenden Signale werden in dem AOS in ein Ultraschallsignal umgewandelt und auf einen optisch transparenten Kristall gelenkt. Ein Laserstrahl, erzeugt von einer bei  $30,9^\circ\text{C}$  temperaturstabilisierten Laserdiode leuchtet den Kristall gleichmäßig aus. Durch die Ultraschallschwingungen werden Dichteschwankungen im Kristall hervorgerufen, die eine Veränderung des Brechungsindex zur Folge haben. Der somit wie ein Brechungsgitter wirkende Kristall beugt das monochromatische Laserlicht, welches auf einer hinter dem Kristall befindlichen CCD-Zeile abgebildet wird. Die Beugung erfolgt in Abhängigkeit von der anliegenden Mikrowellenfrequenz, wobei die abgelenkte Lichtleistung proportional zu der eingestrahlten Mikrowellenleistung ist. Die Leistung wird in eine Anzahl von *counts* umgesetzt, die ausgelesen wiederum in ein Spektrum zur weiteren Bearbeitung überführt werden können.

Ein in das AOS integrierter Kammgenerator erzeugt ein festes Spektrum, das alle 100 MHz ein  $\delta$ -förmiges Signal aufweist. Dieses Signal ist jederzeit zuschaltbar und wird für die Frequenzzeichnung verwendet, um Änderungen in der Instrumentencharakteristik, zum Beispiel thermische Driften der optischen Komponenten, berücksichtigen zu können.

Insgesamt umfaßt das AOS 1728 Kanäle mit einer jeweiligen Bandbreite von 0,89 MHz, also einer gesamten Bandbreite von etwa 1,5 GHz. Es wurde 1994 im *Observatoire de Paris-Meudon* im Rahmen eines ESA Projektes entwickelt und ist seit 1995 ein fester Bestandteil des ASUR-Instruments. Eine ausführlichere Beschreibung ist zum Beispiel in Rosolen et al. (1994) gegeben.

## 2.2.4 Zusammenfassung

In der jetzigen Konfiguration deckt das ASUR-Instrument einen Frequenzbereich von 604,3 bis 662,3 GHz ab. In Abbildung 2.5 ist eine Modellrechnung des Emissionsspektrums der Atmosphäre für eine Beobachtungshöhe von 10 km dargestellt. Das Spektrum wird dominiert von vielen starken Ozonlinien, sowie einer großen Wasserdampflinie bei 620 GHz.

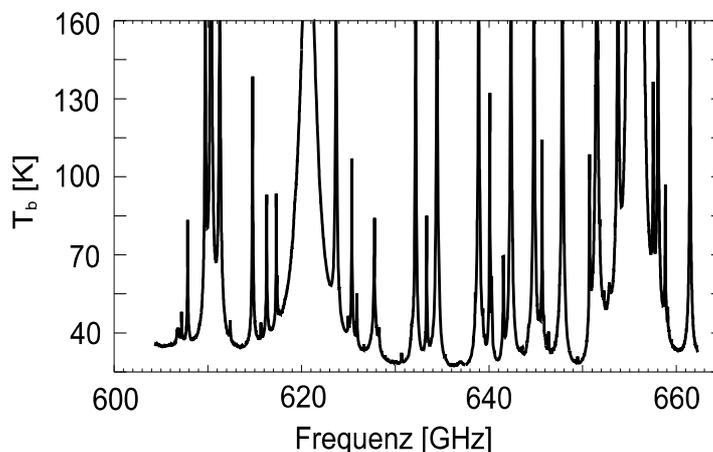


Abbildung 2.5: Modellrechnung des von ASUR abgedeckten Frequenzbereiches für eine Flughöhe von 10 km und einem Beobachtungswinkel von  $12^\circ$ , beziehungsweise  $78^\circ$  Zenitwinkel (adaptiert aus von König (2001)).

Der gesamte Frequenzbereich kann jedoch nicht simultan gemessen werden, da vor allem das AOS mit einer effektiven Bandbreite von etwa 1,5 GHz dies

nicht gestattet. Für die Messung verschiedener Spurenstoffe ist daher ein Umschalten und ein erneutes Optimieren unumgänglich. Die Tabellen 2.1 und 2.2 zeigen einen Überblick der Moleküle mit den dazugehörigen Einstellungen für den ersten und zweiten Lokaloszillator, sowie des Seitenbandfilters, wie sie während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne im Winter 1999/2000 verwendet wurden.

Tabelle 2.1: Übersicht der Moleküle und der zugehörigen Einstellungen von Synthesizer und 2. Lokaloszillator, sowie den resultierenden Werten für den ersten Lokaloszillator und die erste Zwischenfrequenz, die im Rahmen des THESEO 2000/SOLVE Projektes verwendet wurden

| Molekül                  | Synthesizer-<br>frequenz<br>[ MHz ] | 1.LO<br>[ GHz ] | 1.ZF<br>[ GHz ] | 2.LO<br>[ GHz ] |
|--------------------------|-------------------------------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| HNO <sub>3</sub> (606)   | 95,30864                            | 618,19999       | 11,48000        | 15,18000        |
| HOCl (613)               | 96,35494                            | 624,98001       | 11,38000        | 15,08000        |
| HOCl (636)               | 96,30710                            | 624,67001       | 11,20000        | 14,90000        |
| CH <sub>3</sub> Cl (637) | 96,39429                            | 625,23500       | 11,76500        | 15,46500        |
| H <sub>2</sub> O (617)   | 97,03704                            | 629,40002       | 11,60000        | 15,30000        |
| H <sub>2</sub> O (619)   | 97,22222                            | 630,59999       | 11,50000        | 15,20000        |
| H <sub>2</sub> O (620)   | 97,40741                            | 631,80002       | 11,40000        | 15,10000        |
| HCl (625)                | 98,30247                            | 637,60001       | 11,68249        | 15,38249        |
| ClO (649)                | 98,30247                            | 637,60001       | 11,84809        | 15,54809        |
| ClO (shift)              | 98,30247                            | 637,60001       | 12,05000        | 15,75000        |
| N <sub>2</sub> O (652)   | 98,83225                            | 641,03298       | 11,80000        | 15,50000        |
| H <sub>2</sub> O (658)   | 99,69136                            | 646,60001       | 11,40528        | 15,10528        |

Tabelle 2.2: Übersicht der Moleküle und der zugehörigen Linien- und Mittenfrequenzen im Signalband, sowie Linienstärke und Seitenbandeinstellung, die im Rahmen des THESEO 2000/SOLVE Projektes verwendet wurden

| Molekül                  | Mittenfrequenz<br>Signalband<br>[ GHz] | Linien-<br>frequenz<br>[ GHz] | Amplitude<br>[ K] | Seitenband-<br>einstellung<br>[ $\mu\text{m}$ ] |
|--------------------------|--|-------------------------------|-------------------|---|
| HNO <sub>3</sub> (606)   | 606,71999                              | 606,80000                     | 4,50              | 14,260  |
| HOCl (613)               | 613,60001                              | 613,60000                     | 0,36              | 14,222  |
| HOCl (636)               | 635,87001                              | 635,90000                     | 0,20              | 14,105  |
| CH <sub>3</sub> Cl (637) | 637,00000                              | 637,00000                     | 1,30              | 13,618  |
| H <sub>2</sub> O (617)   | 617,80002                              | 617,80000                     | 208,00            | 14,202  |
| H <sub>2</sub> O (619)   | 619,09999                              | 619,10000                     | 208,00            | 14,668  |
| H <sub>2</sub> O (620)   | 620,40002                              | 620,40000                     | 208,00            | 14,423  |
| HCl (625)                | 625,91752                              | 625,91751                     | 17,30             | 13,924  |
| ClO (649)                | 649,44810                              | 649,44809                     | 2,50              | 14,283  |
| ClO (shift)              | 649,65001                              | 649,44809                     | 2,50              | 14,281  |
| N <sub>2</sub> O (652)   | 652,83298                              | 652,83300                     | 8,00              | 13,759  |
| H <sub>2</sub> O (658)   | 658,00529                              | 658,00528                     | 18,00             | 14,226  |



## 3 Datenauswertung

Die Messungen mit dem ASUR-Instrument ergeben Spektren, die aus einer Überlagerung von emittierten Signalen der Spurenstoffe aus allen Höhenbereichen oberhalb der Meßhöhe bestehen. Das Ziel ist jedoch, Aussagen über eine Verteilung der Spurenstoffe über die Höhe zu treffen. Hierbei macht man sich eine Eigenschaft der elektromagnetischen Strahlung zu Nutze. Die Form der Signale und damit die Form der Linien in den Spektren variiert in Abhängigkeit von der Höhe, in der die Strahlung emittiert wurde. Die von dem Instrument gemessene Strahlung stellt somit eine Überlagerung der einzelnen Beiträge aus den unterschiedlichen Höhen dar. Diese werden mit Hilfe von mathematischen Methoden separiert und höhenabhängige Profile von *Volumenmischungsverhältnissen* (VMR) der jeweiligen Spurenstoffe können gewonnen werden.

### 3.1 Elektromagnetische Strahlung

Die Sonne, wie auch die Erde haben bei der Abstrahlung von elektromagnetischer Strahlung näherungsweise die gleichen Eigenschaften wie ein schwarzer Körper. Die Strahlung des Körpers für eine bestimmte Temperatur und Frequenz wird durch die Planck-Funktion beschrieben (vergleiche Gleichung (2.5)).

Ist  $\frac{h\nu}{k_B T} \ll 1$  so kann der Exponentialterm in der Planck-Funktion durch die Rayleigh-Jeans-Näherung ersetzt werden:

$$\exp\left(\frac{h\nu}{k_B T}\right) \approx 1 + \frac{h\nu}{k_B T}. \quad (3.1)$$

Eingesetzt in (2.5) ergibt sich damit ein direkter proportionaler Zusammenhang zwischen der Strahlungsleistung und der Temperatur. Umgestellt nach

der Temperatur ergibt sich damit die sogenannte *Helligkeitstemperatur*

$$T_B = \frac{c^2}{2\nu^2 k_B} \cdot B_\nu(T), \quad (3.2)$$

die proportional zu der Temperatur ist, die einer Strahlungsleistung  $B_\nu(T)$  eines schwarzen Körpers entspricht. Obwohl die Rayleigh-Jeans-Näherung für Wellenlängen ab etwa 1 mm (entsprechend 300 GHz) ihre Gültigkeit verliert, wird die Leistung trotzdem in der Regel in Helligkeitstemperatur angegeben. Dazu wird die abgestrahlte Leistung  $I_\nu$  der Strahlungsleistung  $B_\nu(T)$  gleichgesetzt und es folgt:

$$T_B = \frac{c^2}{2\nu^2 k_B} \cdot I_\nu. \quad (3.3)$$

## 3.2 Strahlungstransfer im Submillimeterbereich

Der *Strahlungstransfer* ist bestimmt durch Absorption, Emission und Streuung an Teilchen. Die Streuung wird im Submillimeterbereich in der Regel vernachlässigt, da der Querschnitt der streuenden Teilchen wesentlich kleiner als die Wellenlänge ist (Wallace und Hobbs (1977)). Diese Annahme trifft für Streuung an Hintergrundaerosolen zu, verliert jedoch bei der Streuung in Wolken an Gültigkeit, wie Bühler et al. (1999) gezeigt haben. Ein Großteil der Messungen des ASUR-Instrumentes wurde in polaren Breiten durchgeführt, wobei die oberhalb der Flughöhe auftretenden Wolken in der Regel nur PSCs sind, deren Partikel eine Größe von bis zu  $20 \mu\text{m}$  (Fahey et al. (2001)) erreichen können. Der Einfluß der Streuung an diesen Partikel wurde auf Grund ihrer geringen Größe und geringen Konzentration ebenfalls in den dargestellten Ergebnissen dieser Arbeit vernachlässigt.

### 3.2.1 Die Strahlungstransfergleichung

Unter Vernachlässigung von Streuung ergibt sich folgende differentielle Formulierung der Strahlungstransfergleichung:

$$\frac{dI_\nu}{ds} = -\alpha_\nu I_\nu + \alpha_\nu B_\nu(T), \quad (3.4)$$

mit der Intensität  $I$  und dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha$ . Der Quellterm  $\alpha_\nu B_\nu(T)$ , der die thermische Emission der Atmosphäre beschreibt, setzt sich aus der Wichtung der Planck-Funktion  $B_\nu(T)$  mit den Absorptionskoeffizienten zusammen.

Für die gemessene Intensität  $I_\nu$  in Zenitrichtung bei einer Beobachtungshöhe  $h$  ergibt sich daraus die integrale Form der Strahlungstransfergleichung:

$$I(\nu) = I_0 \cdot e^{-\tau(h,\infty)} + \int_h^\infty \alpha_\nu \cdot B_\nu(T(s)) \cdot e^{-\tau_\nu(h,s)} ds. \quad (3.5)$$

Der 1. Term setzt sich aus der Hintergrundstrahlung  $I_0$  und deren Abschwächung durch die sich oberhalb der Beobachtungshöhe befindliche Atmosphäre zusammen. Der 2. Term beinhaltet die integrierte Strahlungsintensität an der Position  $h$ , abgeschwächt durch die Selbstabsorption der Atmosphäre. Hierbei ist die Opazität  $\tau$  gegeben mit:

$$\tau_\nu(s, s') = \int_s^{s'} \alpha_\nu(s') ds'. \quad (3.6)$$

### 3.2.2 Absorptionskoeffizient

Der Absorptionskoeffizient  $\alpha$  beschreibt die Wechselwirkung der Strahlung mit den Spurenstoffen in der Atmosphäre. Er ergibt sich als eine Funktion von Druck ( $p$ ), Temperatur ( $T$ ) und Teilchenzahldichte  $N$ , aus dem Produkt von Teilchenzahldichte, temperaturabhängigen Absorptionsquerschnitten  $\sigma$ , und Linienform  $S$ :

$$\alpha_{\nu_{ij}}(p, T, N) = N \cdot \sigma(\nu_{ij}, T) \cdot S(\nu_{ij}, p, T). \quad (3.7)$$

Auf die Definition dieser drei Größen soll nun im Folgenden eingegangen werden.

#### Teilchenzahldichte

Die Teilchenzahldichte ergibt sich aus dem Verhältnis von der Molekülanzahl  $n$  innerhalb des Volumens  $V$  und kann durch das Volumenmischungsverhältnis (VMR) mit Hilfe des idealen Gasgesetzes ausgedrückt werden:

$$N = \frac{n}{V} = \frac{p_{\text{partial}}}{k_B T} = \frac{p}{k_B T} \cdot \text{VMR}. \quad (3.8)$$

Hierbei setzt sich das Volumenmischungsverhältnis aus dem Quotienten von Partialdruck der Spurengase und Gesamtdruck zusammen:

$$\text{VMR} = \frac{p_{\text{partial}}}{p} . \quad (3.9)$$

Aus Gleichungen (3.7) und (3.8) folgt auch, daß der Absorptionskoeffizient proportional zum Volumenmischungsverhältnis ist.

### Absorptionsquerschnitt

Nach Waters (1976) ist der Absorptionsquerschnitt gegeben mit:

$$\sigma(\nu_{ij}, T) = \frac{8\pi^3 \nu_{ij} \mu^2}{3hc} \frac{1}{Q} \left( e^{-\frac{E_i}{k_B T}} - e^{-\frac{E_j}{k_B T}} \right) g_j |\Phi_{ij}|^2 . \quad (3.10)$$

Er beschreibt die druckunabhängige Linienstärke des Überganges eines Moleküls vom Zustand  $i$  in den Zustand  $j$ . Dabei sind  $E_i$  und  $E_j$  die Energien der beiden Zustände  $i$  und  $j$ ,  $\mu$  der Betrag des Dipolmomentes,  $g_i$  das statistische Gewicht des unteren Zustandes, sowie  $|\Phi_{ij}|^2$  die Übergangswahrscheinlichkeit für den Übergang vom Zustand  $i$  in den Zustand  $j$ . Im Allgemeinen kann man elektronische, Rotations-, Vibrationszustände getrennt betrachten und die Zustandssumme  $Q$  des Moleküls ergibt sich zu:

$$Q = Q_{el} \cdot Q_{rot} \cdot Q_{vib} . \quad (3.11)$$

### 3.2.3 Linienverbreiterung

Der dritte Faktor, der die Absorptionskoeffizienten bestimmt, ist die Linienform. Sie wird durch eine Überlagerung von Druck- und Dopplerverbreiterung, sowie der natürlichen Linienverbreiterung gebildet.

#### Natürliche Linienverbreiterung

Die Moleküle in der Atmosphäre befinden sich in unterschiedlich angeregten Zuständen. Jeder dieser Zustände besitzt wiederum eine begrenzte Lebensdauer, nach der das Molekül durch spontane Emission in einen anderen Energiezustand überwechselt. Die Unsicherheit der Lebensdauer  $\Delta t$ , für den Energiezustand  $\Delta E$  ist durch die Unschärferelation gegeben:

$$\Delta t \cdot \Delta E \approx \frac{h}{2\pi} . \quad (3.12)$$

Damit ergibt sich für die natürliche Linienverbreiterung  $\Delta\nu$ :

$$\Delta\nu = \frac{\Delta E}{h} \approx \frac{1}{2\pi\Delta t}. \quad (3.13)$$

Auf die Linienform im Submillimeterwellenbereich hat dieser Effekt jedoch keine große Auswirkung, da diese Verbreiterung vernachlässigbar klein ist gegenüber den nachfolgenden Verbreiterungsmechanismen.

### Dopplerverbreiterung

Die thermische Eigenbewegung der Moleküle in der Atmosphäre erfolgt mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten, die im thermodynamischen Gleichgewicht einer Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung gehorcht:

$$f(v) = \left( \frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{\frac{3}{2}} e^{\left( -\frac{m}{2k_B T} v^2 \right)}. \quad (3.14)$$

Die Geschwindigkeit  $v$  wird hierbei nur von der Temperatur  $T$  und der Molekülmasse  $m$  bestimmt. Auf Grund dieser Bewegung erfährt die von Molekülen emittierte Energie eine Dopplerverschiebung der Frequenz  $\nu$ , bei einer Geschwindigkeit  $v_b$  in Beobachtungsrichtung:

$$\nu = \nu_{ij} \left( 1 + \frac{v_b}{c} \right). \quad (3.15)$$

Hierbei ist  $\nu_{ij}$  die Ausgangsfrequenz und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. Aus den Gleichungen (3.14) und (3.15) folgt nach Normierung die gaußförmige Linienform der Dopplerverbreiterung

$$S_{Doppler}(\nu, \nu_{ij}, T) = \frac{1}{\Delta\nu_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \cdot e^{\left( -\ln 2 \cdot \left( \frac{\nu - \nu_{ij}}{\Delta\nu_D} \right)^2 \right)}, \quad (3.16)$$

mit einer Halbwertsbreite:

$$\Delta\nu_D = \frac{\nu_{ij}}{c} \sqrt{\frac{2k_B T}{m} \cdot \ln 2}. \quad (3.17)$$

Aus Gleichung (3.17) ist ersichtlich, daß die Dopplerverbreiterung mit steigender Temperatur und zu größeren Frequenzen hin zunimmt. Auf Grund der geringen Temperaturschwankungen in einem Bereich bis 100 km Höhe, ist die Dopplerhalbwertsbreite nahezu konstant. Bei einer Frequenz von 649 GHz, dies entspricht in etwa der Frequenz der von ASUR gemessenen ClO-Linie, beträgt sie knapp 0.6 MHz und beeinflusst im Wesentlichen die Messung oberhalb

einer Höhe von etwa 60 km.

### Druckverbreiterung

Der wesentliche Verbreiterungseffekt in der unteren Atmosphäre ist die Druckverbreiterung. Sie entsteht durch die Kollision von Molekülen miteinander, wodurch sich die Lebensdauer der jeweiligen Energiezustände verkürzt. Bei steigendem Druck zu geringeren Höhen hin, verkürzt sich die freie Weglänge der einzelnen Moleküle und die Wahrscheinlichkeit für Stöße wächst an.

Eine gängige Näherung der Linienform im Submillimeterbereich ist die *Lorentz*-Form:

$$S_{Lorentz}(\nu, \nu_{ij}, p, T) = \frac{1}{\pi} \left( \frac{\nu}{\nu_{ij}} \right)^2 \frac{\Delta\nu_p}{(\nu - \nu_{ij})^2 + \Delta\nu_p^2}. \quad (3.18)$$

Sie wird mit Hilfe der *Impact*-Näherung aus der *van Vleck und Weisskopf* Linienform der Druckverbreiterung abgeleitet. Bei der *Impact*-Näherung wird angenommen, daß die Zeit zwischen zwei Stößen sehr viel größer ist, als die Zeit, die ein Stoß benötigt. Bei der *Lorentz*-Form (Gleichung (3.18)) ist zu beachten, daß die Halbwertsbreite eine Temperaturabhängigkeit besitzt, die gegeben ist durch:

$$\Delta\nu_p = \Delta\nu_{p_0} \frac{p}{p_0} \left( \frac{T}{T_0} \right)^\kappa. \quad (3.19)$$

Hierbei ist  $\Delta\nu_{p_0}$  der Druckverbreiterungsparameter bei  $T = T_0$  und bei  $p = p_0$ . Der Exponent  $\kappa$  wie auch  $\Delta\nu_{p_0}$  müssen theoretisch berechnet oder durch experimentelle Messungen bestimmt werden, um die Linienverbreiterung berechnen zu können.

Ein weiterer Effekt des Druckes ist die Druckverschiebung, die bei Linien, die über einen größeren Höhenbereich gemessen werden zu einer asymmetrischen Verformung der Linien führen. Eine Bestimmung der Druckverschiebung aus experimentellen Daten ist zum Beispiel in von König (2001) gegeben.

### Effektive Linienverbreiterung

Da, wie schon erwähnt, die natürliche Linienverbreiterung in dem Submillimeterwellenbereich nur einen vernachlässigbar kleinen Beitrag zur Linienverbreiterung liefert, wird in der Regel die effektive Linienform als eine Faltung von Doppler- (Gleichung (3.16)) und Druckverbreiterung (Gleichung (3.18)) berechnet. Diese resultierende Funktion für die effektive Linienverbreiterung

wird als *Voigt-Form* bezeichnet:

$$S_{Voigt} = \int_{-\infty}^{\infty} S_{Doppler}(\nu - \nu', \nu_{ij}) S_{Lorentz}(\nu, \nu') d\nu'. \quad (3.20)$$

Im Submillimeterwellenbereich wird in Troposphäre und Stratosphäre der wesentliche Anteil an der effektiven Linienform von der Druckverbreiterung bestimmt. Erst ab der Mesosphäre, wo der Druck stark abgenommen hat, wird die Dopplerverbreiterung dominant. In Abbildung 3.1 ist zur Verdeutlichung die effektive Linienform für ein Signal dargestellt, das von Quellen in drei unterschiedlichen Höhen erzeugt wird.

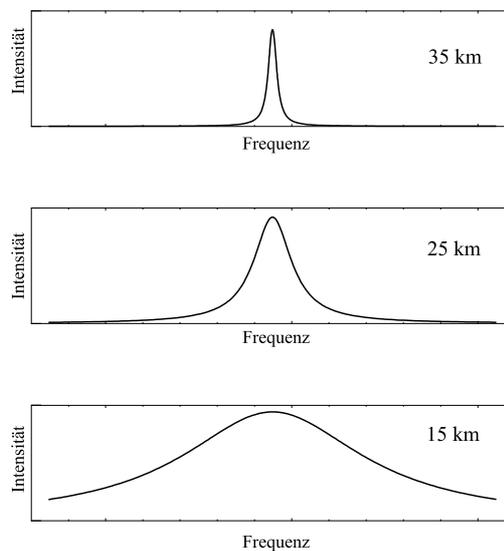


Abbildung 3.1: Ein Beispiel für die Linienform der Intensitäten von Signalquellen aus drei unterschiedlichen Höhen (aus Bremer (1997)).

### 3.2.4 Kontinuum

Ein weiteren Beitrag zu den gemessenen Spektren liefern neben den reinen Signallinien *Kontinuumsabsorptionen*. Zu dem Kontinuum tragen zum Beispiel nichtresonante Absorptionen, die durch Stöße induziert wurden, sowie auch Flanken von weit entfernten Moleküllinien mit bei. Im Frequenzbereich des ASUR-Instrumentes tragen im Wesentlichen die Moleküle von Sauerstoff ( $O_2$ ), Stickstoff ( $N_2$ ) und Wasserdampf ( $H_2O$ ) zu der Kontinuumsabsorption bei.

Für die Auswertung der für diese Arbeit relevanten Daten wurde das Kontinuumsmodell von Liebe verwendet, das für einen Frequenzbereich bis 1000 GHz Gültigkeit besitzt (Liebe et al. (1993)).

Ausführlichere Informationen, sowie eine Gegenüberstellung der verschiedenen Modelle zur Kontinuumsberechnung sind zum Beispiel in Bühler (1999) gegeben.

### 3.3 Inversion der Strahlungstransfergleichung

Wie in den vorherigen Abschnitten beschrieben, werden von dem Instrument Linienspektren der Spurengase aufgezeichnet. Das Ziel ist jedoch, mit Hilfe der Linienform auf die vertikale Verteilung der einzelnen Spurenstoffe, zurück zu schließen.

Hierzu wird ein Vorwärtsmodell aufgestellt in dem die gemessene Strahlung  $y$  als eine Funktion von Spurengasprofilen  $x$  und Modellparametern  $b$  beschrieben wird:

$$y = F(x, b). \quad (3.21)$$

Die Modellparameter  $b$  umfassen alle Vorgaben, die für die Inversion notwendig sind, wie zum Beispiel Druck- und Temperaturprofile und spektroskopische Parameter.

Um die Spurengasprofile  $x$  zu erhalten, muß nun die Strahlungstransfergleichung invertiert werden. Das Inversionsmodell läßt sich dann schreiben als:

$$\varepsilon = |y - F(x, \hat{b})|. \quad (3.22)$$

Hierbei ist  $\varepsilon$  die Differenz zwischen der gemessenen Strahlungsleistung  $y$  und der, mit Hilfe eines Vorwärtsmodells berechneten Strahlungsleistung  $F(x, \hat{b})$ . Die Parameter, die mit einem  $\hat{\phantom{b}}$  gekennzeichnet sind, werden von dem Modell berechnet, beziehungsweise gehen mit begrenzter Genauigkeit in die Modellrechnung mit ein.

### 3.3.1 Die Inversionsmethode

Da die Messungen einen gewissen Meßfehler besitzen, die zusätzlich miteinander korreliert sind, muß eine Kovarianzmatrix  $S$  eingeführt werden. Um das inverse Problem zu lösen, muß nun der mittlere quadratische Fehler  $\chi^2$  minimiert werden:

$$\chi^2 = (y - F(x, \hat{b}))^T S_\varepsilon^{-1} (y - F(x, \hat{b})). \quad (3.23)$$

Diese Minimierung führt jedoch zu keiner stabilen Lösung, so daß zusätzliche Nebenbedingungen eingeführt werden müssen. Dies erfolgt in Form von *a priori* Informationen deren Differenz zu dem Spurengasprofil  $x$  ebenfalls minimiert werden muß. Die Wichtung der *a priori* Information kann mit Hilfe der *a priori*-Kovarianzmatrix  $S_{\hat{x}}$  vorgegeben werden. Für die resultierende Zielfunktion gilt dann:

$$\begin{aligned} Z = & (y - F(x, \hat{b}))^T S_\varepsilon^{-1} (y - F(x, \hat{b})) \\ & + (x - x_{apri})^T S_{\hat{x}}^{-1} (x - x_{apri}). \end{aligned} \quad (3.24)$$

Die Minimierung der Abstandsquadrate wird im allgemeinen als *least square* Verfahren bezeichnet. Die Erweiterung dieser Methode um *a priori* Informationen, wie sie in der Fernerkundung gebraucht wird, ist unter der Bezeichnung *Optimal Estimation Methode* (OEM) bekannt. Für eine ausführliche Beschreibung der zugrunde liegenden Theorie sei hier auf Rodgers (1976) und Rodgers (1990) verwiesen.

### 3.3.2 Optimal Estimation

Im einfachsten Fall, wenn die Absorption vernachlässigbar klein ist, kann das Vorwärtsmodell mit einer linearen Gleichung beschrieben werden, in der  $K$  der Gewichtsfunktion entspricht:

$$y = K \cdot x. \quad (3.25)$$

Der optimale Schätzwert der Zielfunktion für den linearen Fall ergibt sich dann mit:

$$\hat{x} = (K^T S_\varepsilon^{-1} K + S_x^{-1})^{-1} \cdot (K^T S_\varepsilon^{-1} y + S_x^{-1} x). \quad (3.26)$$

Im Falle einer schwachen Nichtlinearität des Parameters  $x$  folgt aus der Taylor-Entwicklung um einen Linearisierungspunkt  $x_n$  unter Vernachlässigung höherer Ordnungen:

$$y \approx F(x_n, \hat{b}) + J_{x_n}(x - x_n). \quad (3.27)$$

Die Gewichtsfunktion  $K$  wird hierbei durch die Jacobimatrix  $J$  am Entwicklungspunkt  $x_n$  ersetzt und ist gegeben durch die partiellen Ableitungen des Vorwärtsmodells nach den Parametern  $x$ :

$$J_{x_n}^{ij} = \left. \frac{\partial F_i(x, \hat{b})}{\partial x_j} \right|_{x_n}. \quad (3.28)$$

Im Gegensatz zu den Gewichtsfunktionen im linearen Fall, besitzt die Jacobimatrix eine Abhängigkeit gegenüber den Spurengasprofilen  $x$ .

Die iterative Lösung der Zielfunktion aus Gleichung (3.24) ist gegeben durch:

$$\hat{x}_{n+1} - \hat{x}_n = [J_{x_n}^T S_\varepsilon^{-1} J_{x_n} + S_x^{-1}]^{-1} \cdot [J_{x_n}^T S_\varepsilon^{-1} (y - F(x_n, \hat{b})) + S_x^{-1} (x_{apri} - \hat{x}_n)]. \quad (3.29)$$

Als Startprofil wird häufig das *a priori* Profil verwendet. Der Abbruch der Iteration erfolgt, wenn ein bestimmter Wert für die Änderung der Zielfunktion unterschritten wird. Dieses Verfahren wird in der Literatur auch als *Newton-Iteration* bezeichnet.

Der wesentliche Aufwand des iterativen Verfahrens besteht in der numerischen Berechnung der Wichtungsfunktionen, die durch die Jacobimatrizen gegeben sind. Die Entwicklung einer schnelleren Methode zu ihrer analytischen Berechnung, wie sie auch für die in dieser Arbeit durchgeführten Inversionen genutzt wurde, ist in von König (2001) gegeben.

### 3.3.3 Fehleranalyse

Für eine Fehleranalyse der Inversion wird das Vorwärtsmodell  $\hat{y}$  linear entwickelt und man erhält, mit dem Meßfehler  $\varepsilon_y$ :

$$\hat{y} - \hat{y}_n = \frac{\partial F}{\partial x}(x - x_n) + \frac{\partial F}{\partial b}(b - b_n) + \varepsilon_y. \quad (3.30)$$

Als Linearisierungspunkt  $x_n$  wird von nun an die *a priori* Information  $x_{apri}$  verwendet. Somit ergibt sich für den Gesamtfehler der Inversion, also der Differenz zwischen geschätztem Wert  $\hat{x}$  und „wahren Wert“  $x$ :

$$\hat{x} - x = D_y \varepsilon_y + (A - I)(x - x_{apri}) + D_y J_b (b - \hat{b}). \quad (3.31)$$

$I$  ist die Einheitsmatrix und  $D$  die Beitragsfunktionsmatrix, die den Zusammenhang zwischen dem Beitrag des Meßwerte  $y$  zu den Werten von  $x$  wiedergibt:

$$D_y = (J_x^T S_\varepsilon^{-1} J_x + S_x^{-1})^{-1} J_x^T S_\varepsilon^{-1}. \quad (3.32)$$

Die Auflösungsmatrix (*Averaging kernel matrix*)  $A$  beschreibt schließlich den Zusammenhang von *a priori* Informationen und der Messung:

$$A = D_y J_x = I - (J_x^T S_\varepsilon^{-1} J_x + S_x^{-1})^{-1} S_x^{-1}. \quad (3.33)$$

Der resultierende Gesamtfehler der Inversion setzt sich somit aus drei Einzelfehlern zusammen:

### Meßfehler

Der Einfluß des Meßfehlers  $\varepsilon_y$  wird durch den erste Term in Gleichung (3.31):  $D_y \varepsilon_y$  beschrieben. Damit ist der Beitrag der Fehlerkovarianzmatrix  $S_\varepsilon$  der Messung, zu der Inversion:

$$S_M = D_y S_\varepsilon D_y^T. \quad (3.34)$$

### Glättungsfehler

Der zweite Term in Gleichung (3.31) beschreibt den Fehler, der durch die Glättung des Spektrums verursacht wird. Hierbei werden die Meßwerte  $x$  mit den *a priori* Werten gefaltet und somit über einen gewissen Höhenbereich „verschmiert“:

$$\hat{x} = Ax + (I - A)x_0. \quad (3.35)$$

Diese Faltung wird durch die Auflösungsfunktion wiedergeben. Im Idealfall, wenn die Messungen unabhängig von den *a priori* Informationen sind, entspricht die Auflösungsmatrix der Einheitsmatrix. Des weiteren kann der in Gleichung (3.35) wiedergegebene Zusammenhang genutzt werden, um Messungen von Instrumenten mit unterschiedlich guter Höhenauflösung miteinander vergleichbar zumachen. Hierzu werden die höheraufgelösten Messungen mit der Auflösungsmatrix der anderen Messungen gefaltet. Diese Methode

wurde auch in den Vergleichen von Messungen, die im Rahmen dieser Arbeit präsentiert werden durchgeführt.

Der durch die Glättung der Profile bedingte Fehler für den Linearisierungspunkt  $x_{apri}$  ist somit gegeben durch:

$$S_G = (A - I)S_{x_{apri}}(A - I)^T. \quad (3.36)$$

### Modellparameterfehler

Im dritten und letzten Term in Gleichung (3.31) wird der systematische Fehler der Modellparameter in der Inversion wiedergegeben. Er beinhaltet die Unsicherheiten und Fehler, mit denen die Modellparameter, wie zum Beispiel Absorptionskoeffizienten oder auch Temperaturprofile bekannt sind. Die resultierende Fehlerkovarianzmatrix für den Modellparameterfehler ergibt sich somit zu:

$$S_P = D_y J_b S_b D_y^T J_b^T. \quad (3.37)$$

### Gesamtfehler

Der Gesamtfehler der Inversion kann noch einmal aufgeteilt werden in den gesamten statistischen Fehler, der durch die Summe der Kovarianzmatrizen von Meß- und Glättungsfehler gegeben ist:

$$S_{stat} = S_M + S_G, \quad (3.38)$$

sowie den Gesamtfehler der Inversion. Dieser setzt sich aus der Summe aller bisher angeführten Fehlerkovarianzmatrizen zusammen:

$$S_{ges} = S_{stat} + S_P = S_M + S_G + S_P. \quad (3.39)$$

**Teil II**

# **Überblick der Kampagnen und Messungen**



## 4 Meßkampagnen 1998/1999 und 1999/2000

Die beiden letzten Kampagnen unter Beteiligung des ASUR-Instrumentes waren im Winter 1998/1999 die europäische HIMSPEC Kampagne und im Winter 1999/2000 in europäisch-amerikanischer Kooperation die THESEO 2000/SOLVE Kampagne .

In den beiden nachfolgenden Unterkapiteln werden die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen der beiden Kampagnen dargestellt, sowie ein Überblick über die durchgeführten Meßflüge gegeben.

### 4.1 HIMSPEC I

Die HIMSPEC Kampagne (*High- and Midlatitude Specification of Chlorine and Nitrogen Families*) war ein Unterprojekt der europäischen THESEO Kampagne (*Third European Stratospheric Experiment on Ozone*) und bestand aus zwei Teilkampagnen. HIMSPEC I wurde im Winter 1998/1999 durchgeführt und konzentrierte sich auf die Messung der Chlor- und Stickstoffverbindungen in arktischen und mittleren Breiten. HIMSPEC II konzentrierte sich auf mittlere und subtropische Breiten, um so das Ziel des THESEO Projektes, den Einfluß von arktischem Ozon auf das Ozon in mittleren und subtropischen Breiten zu dokumentieren. Diese zweite Teilkampagne wurde Ende April 1999 durchgeführt. Dabei war an Stelle des ASUR-Frontends ein vom *Rutherford Appleton Laboratory* (RAL) entwickeltes und bei einer Frequenz von ungefähr 500 GHz betriebenes Frontend in die *Falcon* eingebaut.

Während beider Teilkampagne befand sich ebenfalls das OLEX-Instrument des DLR mit an Bord der *Falcon*, ein Lidar, welches neben Aerosolrückstreuungen auch Ozonprofile messen kann.

Die in dieser Arbeit verwendeten Daten stammen ausschließlich von Mes-

sungen mit dem ASUR-Frontend. Entsprechend beschränken sich die hier präsentierten Ergebnisse auf die HIMSPEC I Kampagne.

### 4.1.1 Meteorologische Bedingungen

In Abbildung 4.1 ist die Temperaturentwicklung in der unteren Stratosphäre für die Winter seit dem Jahre 1994/1995 gezeigt. Zu erkennen ist, daß der Winter 1998/1999 der wärmste Winter seit Mitte der 90er Jahre war.

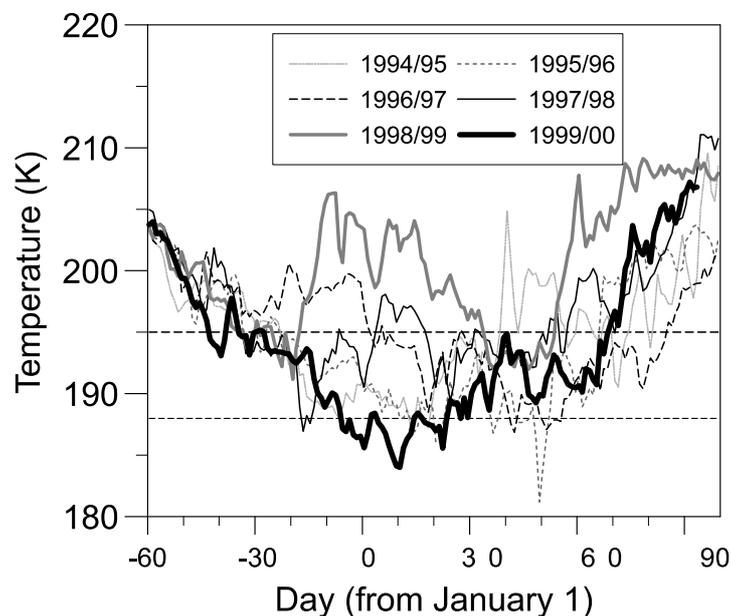


Abbildung 4.1: Minimumtemperaturen auf der 46 hPa Isobaren aus UKMO Analysen für die letzten 6 Winter. Gestrichelt eingezeichnet sind die Bildungstemperaturen von NAT ( $T_{\text{NAT}} = 195 \text{ K}$ ) und Eis ( $T_{\text{Eis}} = 188 \text{ K}$ ). Das Bild wurde entnommen aus: Sinnhuber et al. (2000).

Er war gekennzeichnet durch einen kalten und starken Vortex, der sich bereits im November entwickelt hatte (vergleiche hierzu auch Abbildung 4.2). Ende November wurde die für die Bildung von NAT benötigte Schwellentemperatur  $T_{\text{NAT}}$  unterschritten und somit die Bildung von PSCs möglich. Mitte Dezember kam es jedoch zu einer ersten Erwärmung der Stratosphäre innerhalb des polaren Vortex und einer damit verbundenen Abschwächung der Wirbelstärke. Diese Phase hielt bis Mitte Januar an, ab wo die Temperaturen wieder

sanken und sich erneut ein starker polarer Wirbel ausbildete, mit Temperaturen kleiner als  $T_{\text{NAT}}$ . Bereits Mitte Februar kam es zu einer zweiten Erwärmung der Luftmassen, die letztendlich zum Aufbrechen den polaren Vortex führte.

In Abbildung 4.2 ist die Fläche des Vortex mit einer Wirbelstärke von größer 38 PVU als schwarze Linie für die 475 K Isentrope dargestellt. Die grauschattierte Fläche entspricht der Fläche, in der die Temperaturen den Schwellenwert  $T_{\text{NAT}}$  unterschritten hatten. Der Vergleich mit den minimalen und maximalen Flächen der Vortexbedeckung der Jahre 1996 bis 1999 zeigten, daß sich im Winter 1998/1999 nur ein verhältnismäßig schwacher Vortex entwickelt hatte, der zudem sehr früh zusammengebrochen war.

Ein detaillierter Überblick über die meteorologischen Bedingungen während der HIMSPEC I Kampagnen wird zum Beispiel in EORCU (1999) gegeben.

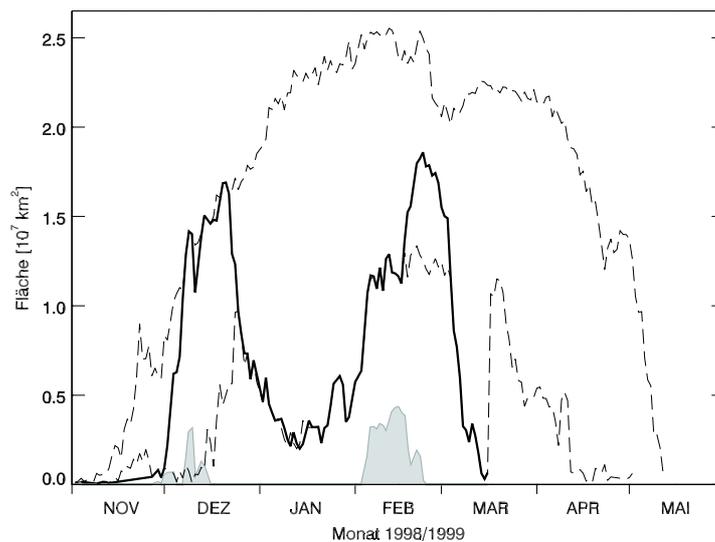


Abbildung 4.2: Zeitserie der Fläche des polaren Vortex (schwarze Linie,  $PV \geq 38$  PVU), sowie der Fläche mit Temperaturen unterhalb der Bildungstemperatur  $T_{\text{NAT}}$  (grauschattiert) jeweils für die 475 K Isentrope im Winter 1998/1999. Ebenfalls dargestellt sind die minimale und maximale Vortexfläche für die Jahre 1996 bis 2000 (aus Eichmann (2001)).

### 4.1.2 Kampagnenüberblick

Wie bereits erwähnt, wurden die Messungen des ASUR-Instrumentes von Bord der *Falcon* aus durchgeführt. Im Rahmen des HIMSPEC I Projektes wurden 5 Meßflüge durchgeführt, die im Detail in Tabelle 4.1 zusammengefaßt, sowie grafisch in Abbildung 4.3 dargestellt sind. Die Grafik der Flugrouten gibt gleichzeitig auch die maximale Reichweite der Falcon wieder, deren Flugdauer auf 4 bis 4,5 Stunden beschränkt ist.

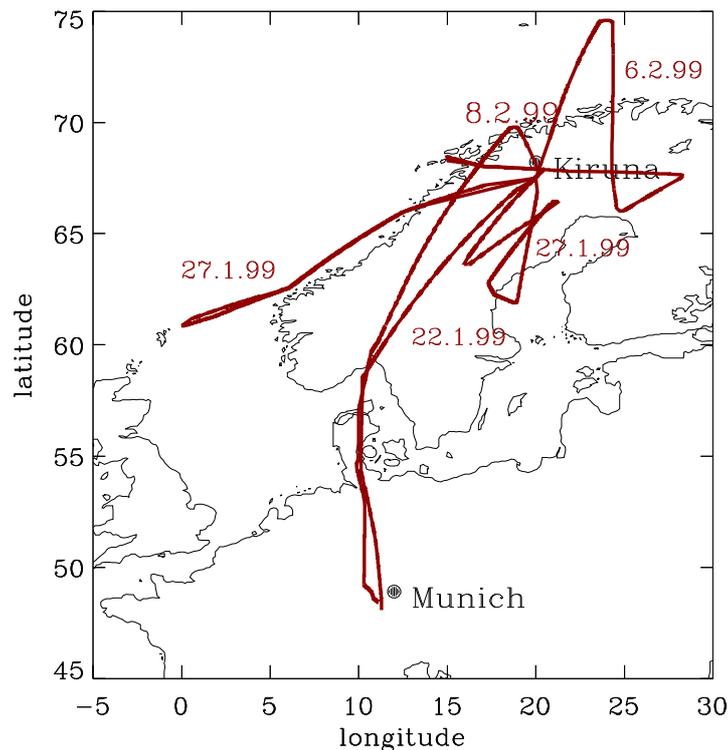


Abbildung 4.3: Die Meßflüge der *Falcon* während der HIMSPEC I Kampagne im Winter 1998/1999.

Die 5 Meßflüge setzten sich aus 2 Transferflügen zwischen Oberpfaffenhofen, der Heimatbasis der *Falcon* und Kiruna, sowie aus 3 lokalen Meßflügen von Kiruna aus zusammen. Im Zeitraum des Flugfensters, vom 22. Januar bis 8. Februar 1999, befand sich der Vortex im Beginn der zweiten Aufbauphase. Erst zum Ende der Meßkampagne Anfang Februar hin wurde die Bildungstemperatur  $T_{\text{NAT}}$  von PSC's unterschritten, doch konnten keine Messungen innerhalb einer PSC von ASUR durchgeführt werden.

Die drei Lokalflüge wurden in Koordination mit Ballonexperimenten, gestartet von der nahegelegenen Station ESRANGE aus, durchgeführt.

Tabelle 4.1: Übersicht der Meßflüge des ASUR-Instrumentes, an Bord des Forschungsflugzeuges *Falcon* des DLR, im Rahmen der HIMSPEC I Kampagne im Winter 1998/1999.

| Nr. | Datum  | Start<br>[UT] | Dauer<br>[h] | Flugroute                           | Ziele                              |
|-----|--------|---------------|--------------|-------------------------------------|------------------------------------|
| 01  | 22.01. | 10:32         | 3:13         | Oberpfaffenhofen<br>- Oslo - Kiruna | Transfer,<br>mittlere/hohe Breiten |
| 02  | 27.01. | 04:53         | 3:10         | südlich von Kiruna                  | MIPAS/SFINX,<br>ClO Tagesgang      |
| 03  | 27.01. | 10:45         | 3:30         | südwestlich<br>von Kiruna           | ClO am Mittag,<br>SAOZ, Vortexrand |
| 04  | 06.02. | 10:25         | 3:50         | nördlich und östlich<br>von Kiruna  | TRIPLE, SAOZ,<br>BrO               |
| 05  | 08.02. | 09:12         | 3:43         | Kiruna - Oslo -<br>Oberpfaffenhofen | Transfer,<br>mittlere/hohe Breiten |

## 4.2 THESEO 2000/SOLVE

Die SOLVE/THESEO 2000 Kampagne wurde im Winter 1999/2000 in amerikanisch - europäischer Kooperation durchgeführt.

Das amerikanische SOLVE Projekt (*SAGE III Ozone Loss and Validation Experiment*) hatte sich neben der Validierung des SAGE III (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*) Satelliten-Experimentes die Untersuchung des stratosphärischen Ozonverlustes zum Ziel gesetzt. Obwohl der Start des Satelliten verschoben werden mußte, wurde die Kampagne trotzdem wie geplant durchgeführt.

Das in Kooperation stattfindende THESEO 2000 Projekt war eine Fortsetzung des selben Projektes aus dem Vorjahr und verfolgte wiederum die Untersuchung des Einflusses von arktischem Ozon auf das Ozon in mittleren und subtropischen Breiten.

### 4.2.1 Meteorologische Bedingungen

Die Darstellung der Temperaturentwicklung in der unteren Stratosphäre in Abbildung 4.1 zeigt den signifikanten Unterschied gegenüber dem Winter 1998/1999. Zwar war die anfängliche Entwicklung der Temperatur vergleichbar mit der im Vorjahr, bereits Anfang Dezember wurde die für die Bildung von NAT benötigte Temperatur  $T_{\text{NAT}}$  unterschritten, doch an Stelle einer Erwärmung wie im Vorjahr, sanken die Temperaturen weiter und erreichten Ende Dezember den Schwellenwert  $T_{\text{Eis}}$ , der zur Bildung von PSCs Typ II notwendig ist. Diese meteorologischen Bedingungen hielten bis in die zweite Januarhälfte an, in der es zu einer kleineren stratosphärischen Erwärmung kam. Trotz dieser Erwärmung blieben die Temperaturen stabil auf einem Niveau zwischen  $T_{\text{NAT}}$  und  $T_{\text{Eis}}$  bis Anfang März.

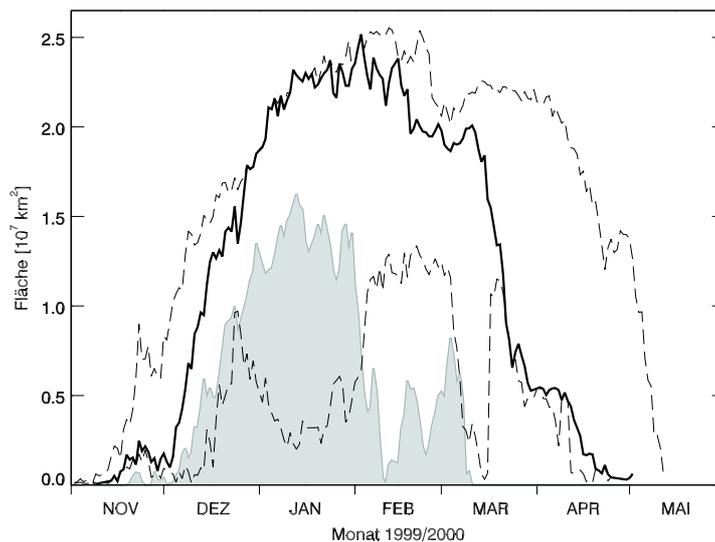


Abbildung 4.4: Zeitserie der Fläche des polaren Vortex (schwarze Linie,  $PV \geq 38$  PVU), sowie der Fläche mit Temperaturen unterhalb der Bildungstemperatur  $T_{\text{NAT}}$  (grauschattiert) jeweils für die 475 K Isentrope im Winter 1999/2000. Ebenfalls dargestellt sind die minimale und maximale Vortexfläche für die Jahre 1996 bis 2000 (aus Eichmann (2001)).

Der Vortex entwickelte sich etwas später als im Vorjahr und zeigte Ende November in der unter Stratosphäre eine weniger starke Entwicklung als in der oberen. Doch zwischen Anfang und Mitte Dezember stabilisierte und entwickelte er sich zu einem stark ausgeprägtem Vortex in der Stratosphäre (Man-

ney und Sabutis (2000)). Die kurze Erwärmungsperiode im Februar führte nur zu einer geringfügigen Störung des Vortex, wobei er einen geringen Teil seiner Größe einbüßte (vergleiche hierzu Abbildung 4.4). Der eigentliche Zusammenbruch erfolgte Mitte März.

Im Vergleich mit dem Vorjahr hatte sich im Winter 1999/2000 ein starker und eine große Fläche bedeckender Vortex entwickelt. Die Temperaturen blieben für einen Zeitraum von Anfang Dezember bis Anfang März unterhalb der Bildungstemperatur von NAT ( $T_{\text{NAT}}$ ). Lediglich der Zusammenbruch erfolgte früher, als schon in früheren Jahren beobachtet wurde.

Im Vergleich war der Winter 1999/2000 einer der kältesten der letzten 10 Jahre (siehe auch Abbildung 4.1).

### 4.2.2 Kampagnenüberblick

Die THESEO 2000/SOLVE Kampagne gliederte sich in drei Teilkampagnen, von jeweils etwa drei Wochen Dauer: Ende November bis Mitte Dezember, Mitte bis Ende Januar, sowie Ende Februar bis Mitte März. Somit wurde der gesamte Winter und die Entwicklung des polaren Vortex fast vollständig von seinem Aufbau bis zum Zusammenbruch abgedeckt. Das ASUR-Instrument nahm an allen drei Teilkampagnen erfolgreich an Bord der NASA DC-8 teil. Neben dem ASUR-Instrument wurden von 18 weiteren Instrumenten Messungen von der DC-8 aus durchgeführt. Vertreten waren neben drei Lidar-Geräten (die Ozon und Aerosole, beziehungsweise Temperatur gemessen haben), ein FTIR, sowie ein weiteres Mikrowellenradiometer und diverse *in situ*-Geräte. Bei einer durchschnittlichen Flughöhe der DC-8 von 10 bis 12 km wurden die meisten Messungen der *in situ*-Geräte nahe oder innerhalb der Tropopausenregion durchgeführt. Die Messungen des FTIRs erfolgten in Sonnenokkultation, während das Mikrowellenradiometer Temperaturprofile aufzeichnete.

Die Teilkampagnen bestanden jeweils aus zwei Transferflügen zwischen Dryden, Kalifornien (nahe Los Angeles), USA, der Heimatbasis der DC-8 und Kiruna, Nordschweden. Desweiteren wurden zwei mal fünf und ein mal sechs Lokalflüge von Kiruna aus durchgeführt. In Abbildung 4.5 sind exemplarisch vier Lokalflüge sowie ein Transferflug eingezeichnet. Die große Reichweite der DC-8 von mehr als 10 Stunden Flugdauer ermöglichte Meßflüge bis hin zum Kältepol des Vortex, der sich im Dezember in der Nähe der Inseln Novaya

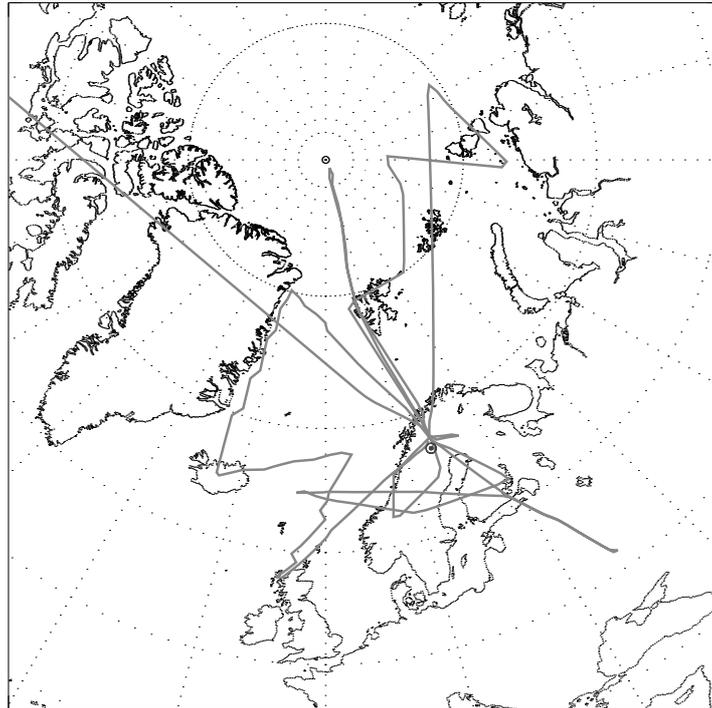


Abbildung 4.5: Fünf ausgewählte Flugrouten der *DC-8* während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne 1999/2000. Der Ausgangspunkt der Lokalflüge war die Basis in Kiruna, Nordschweden.

Zemlya und Franz-Josef-Land befand. Desweiteren wurden Flüge von Grönland über Spitzbergen, zum Nordpol, oder auch bis weit nach Rußland hinein durchgeführt. Eine detailliert Ausführung aller Flüge ist in Tabelle 4.2 gegeben. Ein erwähnenswerter Zwischenfall war der Durchflug durch die Aschewolke des erst wenige Tage zuvor ausgebrochenen Vulkans Hekla auf Island, während des Transferfluges von Dryden nach Kiruna Ende Februar 2000.

Neben der *DC-8* war im Januar und März das Stratosphärenflugzeug *ER-2* der NASA in Kiruna stationiert, mit 17 zumeist *in situ*-Instrumenten an Bord. Desweiteren waren die *Falcon* mit dem OLEX-Instrument, sowie zwei weitere europäische Flugzeuge zeitweise vor Ort. Parallel fand eine Reihe von europäischen und amerikanischen Ballonstarts von der nahegelegenen Raketenbasis ESRANGE aus statt.

Zusammenfassend war das SOLVE/THESEO 2000 Projekt die größte bisher durchgeführte Meßkampagne in der nördlichen Hemisphäre mit mehr als 500 Wissenschaftler aus Europa, Japan, den USA und Kanada (EORCU (2000)).

Tabelle 4.2: Übersicht der Meßflüge des ASUR-Instrumentes, an Bord des Forschungsflugzeuges DC-8 der NASA, im Rahmen der THESEO 2000/SOLVE Kampagne im Winter 1999/2000.

| Nr. | Datum  | Start<br>[ UT] | Dauer<br>[ h] | Flugroute                   | Ziele           |
|-----|--------|----------------|---------------|-----------------------------|-----------------|
| 01  | 30.11. | 00:44          | 9:40          | Dryden-Kiruna               | Transfer        |
| 02  | 02.12. | 08:20          | 8:15          | Spitzbergen-Grönland        | ClO             |
| 03  | 05.11. | 07:52          | 8:40          | Franz Josef Land-Island     | PSC             |
| 04  | 07.12. | 09:20          | 9:35          | Fr.J. Land-Spitzbergen      | kalter Pol, PSC |
| 05  | 10.12. | 09:01          | 8:25          | Fr.J. Land-Spitzb.-Grönland | PSC             |
| 06  | 12.12. | 09:50          | 9:35          | Novaya Zemlya-Spitzbergen   | Aerosole        |
| 07  | 14.12. | 07:53          | 8:15          | über Norwegen               | Vortexrand      |
| 08  | 16.12. | 08:58          | 10:20         | Kiruna-Dryden               | Transfer        |
| 09  | 14.01. | 00:08          | 9:50          | Dryden-Kiruna               | Transfer        |
| 10  | 16.01. | 07:04          | 9:45          | Fr.J. Land-Spitzbergen      | ClO-Aktivierung |
| 11  | 20.01. | 08:29          | 9:35          | Norwegen-Spitzb.-Nordpol    | ER-2, PSC       |
| 12  | 23.01. | 07:46          | 10:05         | Baltische See-Grönland      | ER-2, PSC       |
| 13  | 25.01. | 07:40          | 10:10         | Spitzbergen-Südnorwegen     | Vortexrand      |
| 14  | 27.01. | 09:21          | 9:40          | Rußland-Finland             | ClO-Entwicklung |
| 15  | 29.01. | 08:57          | 10:22         | Kiruna-Dryden               | Transfer        |
| 16  | 27.02. | 21:08          | 10:05         | Dryden-Kiruna               | Transfer, Hekla |
| 17  | 03.03. | 14:31          | 9:45          | Grönland-Spitzbergen        | kalter Pol      |
| 18  | 05.03. | 11:00          | 9:20          | Spitzbergen-Rußland         | kalter Pol, PSC |
| 19  | 08.03. | 08:29          | 10:25         | Finland-Novaya-Spitzb.      | PSC             |
| 20  | 09.03. | 14:00          | 9:40          | Grönland-Island             | Vortexrand      |
| 21  | 11.03. | 12:06          | 8:40          | Novaya,Rußland-Spitzb.      | ClO             |
| 22  | 13.03. | 15:00          | 8:40          | Spitzb.-NovayaSemlya        | Vortexrand      |
| 23  | 15.03. | 05:55          | 8:35          | Kiruna-Seattle              | Transfer        |



## 5 Überblick der Meßergebnisse von $\text{CH}_3\text{Cl}$ , $\text{N}_2\text{O}$ und Ozon

In diesem Kapitel soll ein Überblick über die Ergebnisse der ASUR-Messungen von Ozon und  $\text{N}_2\text{O}$  während der HIMSPEC I Kampagne, sowie zusätzlich von  $\text{CH}_3\text{Cl}$  während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne gegeben werden.

Die Einzelmessungen werden zum einen interpoliert auf die 475 K Isentrope (für  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CH}_3\text{Cl}$ ), sortiert nach ihrer jeweiligen äquivalenten Breite dargestellt, beziehungsweise als Flugmittelwert auf der 475 K Isentrope (für Ozon). Zum Anderen erfolgt eine Darstellung in Form von Mittelwerten der jeweiligen Teilkampagne, getrennt nach Messungen innerhalb und außerhalb des polaren Vortex.

In Abbildung 5.1 ist die zeitliche Entwicklung des polaren Vortex in Abhängigkeit von der äquivalenten Breite für die Winter 1998/1999 und 1999/2000 wiedergegeben. Die Darstellung erfolgte für die 475 K Isentrope (dies entspricht in etwa 60 hPa beziehungsweise einer Höhe von etwa 20 km). Die äquivalente Breite ist ein Maß für die Lage innerhalb des polaren Vortex. Dabei wird die Fläche, die von dem Vortex bedeckt wird konzentrisch auf den Pol projiziert. Der Vortexkern, das Gebiet der größten PV-Werte, läge somit direkt auf dem Pol, oder auch bei  $90^\circ$  äquivalenter Breite. Messungen gleicher PV haben entsprechend die selbe äquivalente Breite unabhängig von ihrer realen geographischen Breite. Nach Nash et al. (1996) wird ein innerer und ein äußerer Rand über Minimum und Maximum der zweiten Ableitung der potentiellen Wirbelstärke als eine Funktion der äquivalenten Breite definiert. Die in Abbildung 5.1 eingezeichnete weiße Linie entspricht dem inneren Rand des Vortex, berechnet nach Nash et al. (1996).

Für die Winter 1998/1999 und 1999/2000 wurde jeweils ein mittlerer Randbereich des Vortex zwischen  $55^\circ$  und  $70^\circ$  äquivalenter Breite errechnet. Messungen mit einer äquivalenten Breite geringer als  $55^\circ$  befanden sich somit außerhalb, mit größer als  $70^\circ$  innerhalb des Vortex.

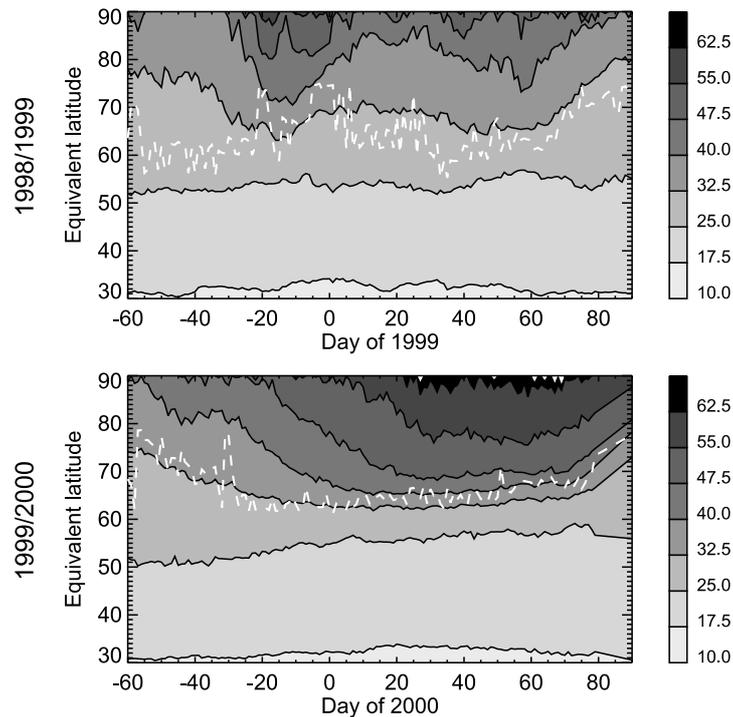


Abbildung 5.1: Entwicklung der potentiellen Wirbelstärke auf der 475 K Isentrope als Funktion der äquivalenten Breite, aufgetragen gegen den Tag des Jahres. Oben: Winter 1998/1999, unten: Winter 1999/2000. In weiß eingezeichnet ist der innere Rand des Vortex, bestimmt aus dem größten Gradienten der PV (entnommen aus von König (2001)).

## 5.1 $\text{N}_2\text{O}$

In Abbildung 5.2 sind die Mittelwerte der  $\text{N}_2\text{O}$  Messungen der HIMSPEC I Kampagne, sowie die Mittelwerte der drei THESEO 2000/SOLVE Teilkampagnen, für außerhalb und innerhalb des Vortex dargestellt.

Der Vergleich der Messungen innerhalb und außerhalb des Vortex im Januar 1999 zeigt eine Veränderung im Profil, die durch das Absinken der Luftmasse zu erklären und zu erwarten ist. Der Grund hierfür ist, daß sich  $\text{N}_2\text{O}$  in der unteren Stratosphäre inert gegenüber chemischen Reaktionen verhält. In der oberen Stratosphäre nimmt dagegen das Profil durch Photolyse der Moleküle zu größeren Höhen hin rasch ab. Ein ähnlicher Sachverhalt ist auch in den Messungen im Winter 1999/2000 zu beobachten. Im Vortex sinken die Luftmassen während des Winters kontinuierlich ab, was sich in den Messungen widerspiegelt. Außerhalb des Vortex zeigen die Messungen ein vergleichbares

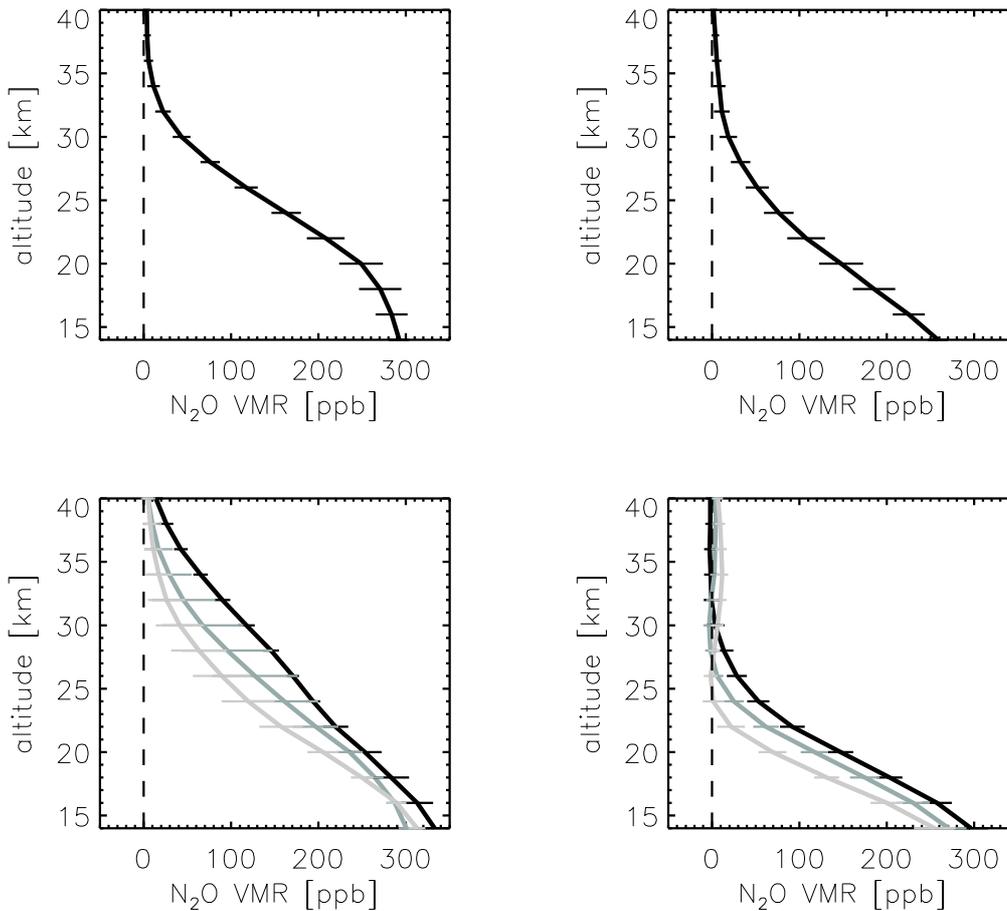


Abbildung 5.2: Gemittelte N<sub>2</sub>O Profile während der HIMSPEC I Kampagne (oben) und während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne (unten). Links: Messungen außerhalb des Vortex (äquivalente Breite kleiner als 55°). Rechts: Messungen innerhalb des Vortex (äquivalente Breite größer als 70°). Oben: Januar und Februar 1999. Unten: schwarze Linie: Dezember 1999, graue Linie: Januar 2000, helle graue Linie: März 2000. Die Fehlerbalken entsprechen der Standardabweichung des Mittelwertes.

Verhalten. Hier werden jedoch bei gleicher Höhe größere Volumenmischungsverhältnisse beobachtet als innerhalb des Vortex.

Der Vergleich der beiden Winter zeigt, daß die Luftmassen im Januar 1999 bei weitem nicht so stark abgesunken waren wie im gleichen Monat des darauffolgenden Jahres. Die Januar 1999 Messungen zeigen unterhalb von 20 km Höhe Volumenmischungsverhältnisse, die zwischen den Meßwerten von Dezember 1999 und Januar 2000 lagen. Oberhalb von 20 km Höhe sind die Mischungsverhältnisse generell größer als im Dezember 1999. Die Messung im Januar 1999 außerhalb des Vortex variiert im Volumenmischungsverhältnis in-

nerhalb der Werte des Winters 1999/2000. Doch da für den Winter 1998/1999 nur eine Einzelmessung zu Grunde lag, sollte das Ergebnis nicht überinterpretiert werden.

## 5.2 CH<sub>3</sub>Cl

Seit der Erweiterung des Frequenzbereiches von ASUR im Jahre 1998 kann der Spurenstoff CH<sub>3</sub>Cl ebenfalls gemessen werden. Ein erster Versuch wurde während der HIMSPEC I Kampagne unternommen, der jedoch auf Grund zu geringer Integrationszeit fehlschlug. So wurden vom ASUR-Instrument erstmals CH<sub>3</sub>Cl Spektren während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne erfolgreich gemessen.

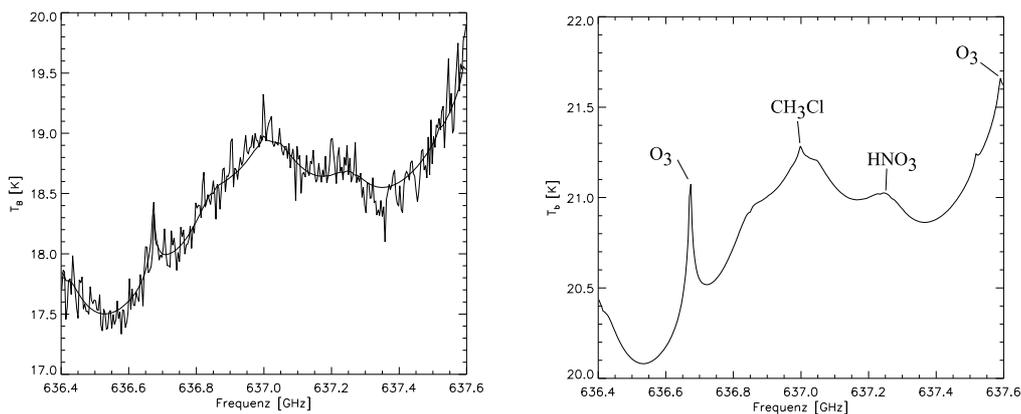


Abbildung 5.3: Links: typisches aufintegriertes Spektrum von CH<sub>3</sub>Cl, bestehen aus 40 Einzelspektren (aufgenommen am 27. Februar 2000). Die breite schwarze Linie zeigt die Anpassung der Vorwärtsrechnung an das integrierte Spektrum. Rechts: Vorwärtsrechnung für CH<sub>3</sub>Cl.

In Abbildung 5.3 ist auf der linken Seite ein typisches Spektrum dargestellt. Hierbei wurden bereits 40 Einzelspektren aufintegriert um das Rauschen für eine Auswertung entsprechend zu verringern. Die Messung wurde auf dem Transferflug von Dryden nach Kiruna, am 27. Februar 2000, außerhalb des Vortex durchgeführt. Ebenfalls eingezeichnet ist die Anpassung der Vorwärtsrechnung (glatte schwarze Linie) an das gemessene Spektrum. Das Bild auf der rechten Seite zeigt die selbe Vorwärtsrechnung vor der Anpassung an das

Spektrum. Zusätzlich sind hier die Spurenstoffe gekennzeichnet, die innerhalb des genutzten Frequenzfensters Linien besitzen und somit bei der Inversion von CH<sub>3</sub>Cl berücksichtigt werden müssen.

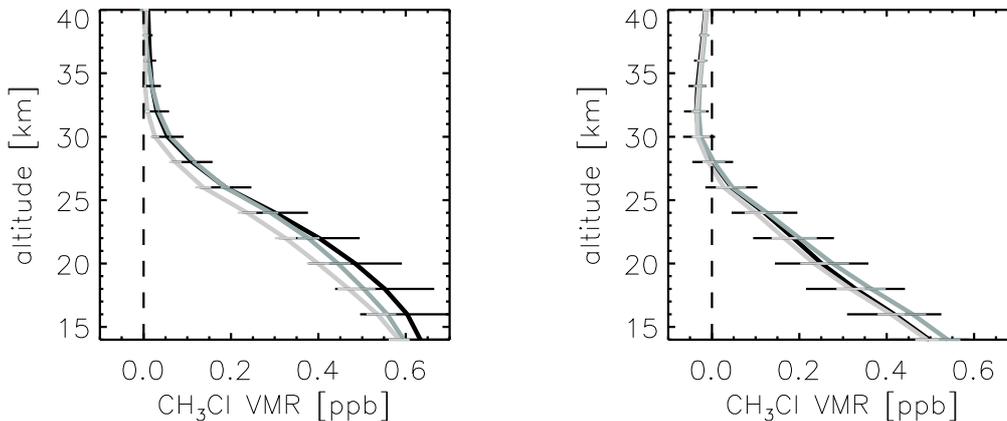


Abbildung 5.4: Gemittelte CH<sub>3</sub>Cl Profile während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne. Links: Messungen außerhalb des Vortex (äquivalente Breite kleiner als 55°). Rechts: Messungen innerhalb des Vortex (äquivalente Breite größer als 70°). Schwarze Linie: Dezember 1999, graue Linie: Januar 2000, helle graue Linie: März 2000. Die Fehlerbalken entsprechen der Standardabweichung des Mittelwertes.

Abbildung 5.4 zeigt die Mittelwerte der CH<sub>3</sub>Cl Messungen der drei THESEO 2000/SOLVE Teilkampagnen, für außerhalb (links) und innerhalb (rechts) des Vortex. Die Profile innerhalb des Vortex zeigen keine signifikante Variation zwischen den einzelnen Teilkampagnen. Zu erwarten wäre jedoch ein ähnliches Verhalten wie bei N<sub>2</sub>O, auf Grund der Tracereigenschaften von CH<sub>3</sub>Cl, auf die in Kapitel 5.4 genauer eingegangen wird. Außerhalb des Vortex ist ein leichtes Absinken der Luftmassen in den Profilen von Dezember 1999 (schwarz) hin zu März 2000 (hell grau) zu erkennen. Doch auch hier ist es weniger stark ausgeprägt als in dem Falle von N<sub>2</sub>O (vergleiche Abbildung 5.2). Ein Blick auf Abbildung 5.10 zeigt, daß während der Dezember und Januar Teilkampagnen kaum Messungen von CH<sub>3</sub>Cl durchgeführt wurde. Die somit zu Grunde liegende Statistik, aus der die Mittelwerte berechnet wurden, beruht auf einer beziehungsweise zwei Einzelmessungen. Für den Fall, daß nur eine Einzelmessung vorlag, wurde statt der Varianz, der statistische Fehler der Messung verwendet.

### 5.3 Ozon

Abbildung 5.5 zeigt über jeweils eine Kampagne, beziehungsweise Teilkampagne gemittelte Profile von Ozon. Auf der linken Seite sind die Profile außerhalb des Vortex wiedergegeben und auf der rechten Seite innerhalb. Die Profile, die im Januar/Februar 1999 aufgenommen wurden (obere Reihe) zeigen nur eine leichte Abnahme der Mischungsverhältnisse in den Vortex hinein. Diese Ab-

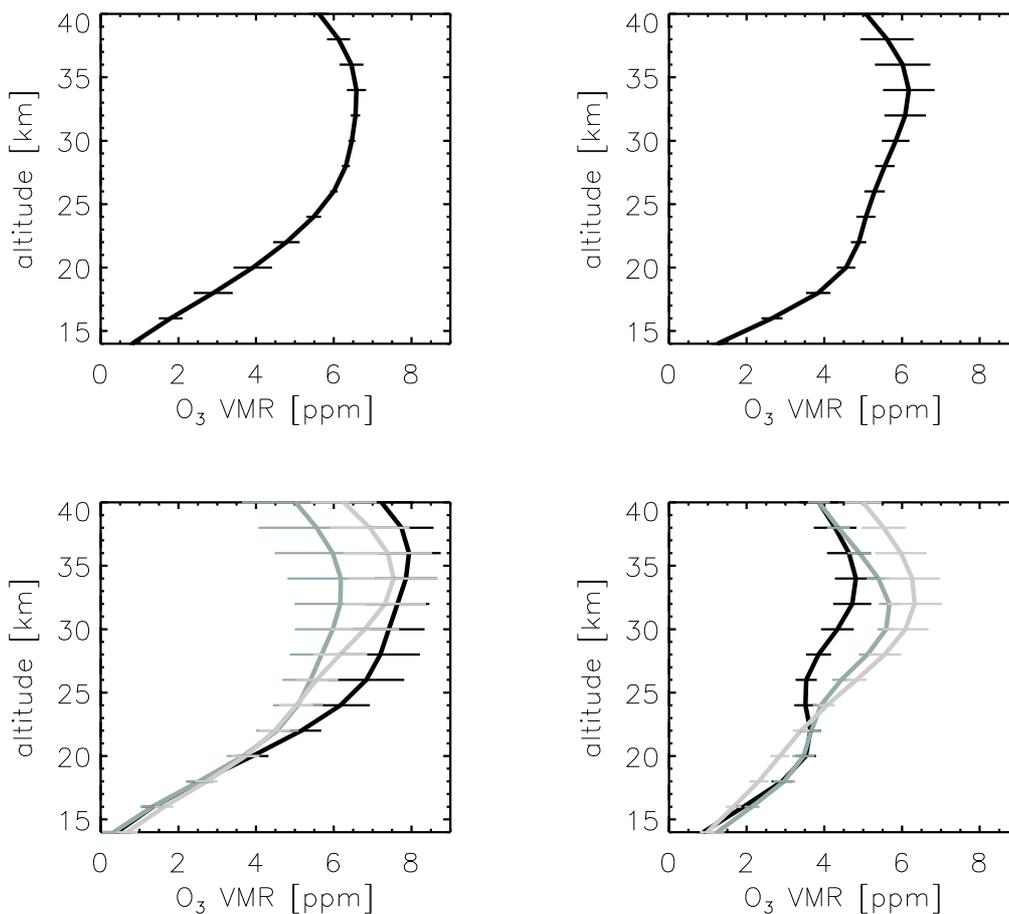


Abbildung 5.5: Gemittelte Ozon-Profile während der HIMSPEC I Kampagne (oben) und während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne (unten). Links: Messungen außerhalb des Vortex (äquivalente Breite kleiner als  $55^\circ$ ). Rechts: Messungen innerhalb des Vortex (äquivalente Breite größer als  $70^\circ$ ). Oben: Januar und Februar 1999. Unten: schwarze Linie: Dezember 1999, graue Linie: Januar 2000, helle graue Linie: März 2000. Die Fehlerbalken entsprechen der Varianz des Mittelwertes.

nahme in den Profilen des Winter 1999/2000 (untere Reihe) ist viel ausgepräg-

ter. Zum anderen ist innerhalb des Vortex eine deutliche Zunahme in den Mischungsverhältnissen oberhalb von 25 km Höhe mit fortschreitendem Winter zu erkennen. Diese Zunahme ist bedingt durch den Transport von ozonreicher Luft aus mittleren Breiten von oben in den Vortex hinein und deren Absinken. Unterhalb von 25 km wurde eine Abnahme der Mischungsverhältnisse zwischen Januar und März 2000 beobachtet, die als Ozonabbau interpretiert werden kann.

Im Vergleich mit dem Winter 1999/2000 zeigt das Ozonprofil im Januar/Februar 1999 innerhalb des Vortex für den Höhenbereich bis 30 km höhere Mischungsverhältnisse. Oberhalb von 30 km entsprechen sie denen des Märzmittelwertes von 2000. Außerhalb des Vortex stimmen die Mittelwerte von Januar 1999 und Januar 2000 recht gut überein.

Die Flugmittelwerte auf der 475 K Isentrope von Januar/Februar 1999 (Abbildung 5.6) zeigen eine recht große Variation. Anzumerken ist, daß am 27. Tag zwei Meßflüge durchgeführt wurden. Die Variation deutet auf einen nicht gut durchmischten Vortex hin, was sich auch schon in den  $N_2O$ -Messungen gezeigt hatte. Ein Trend in den Messungen, der ein Anzeichen für einen Ozonabbau wäre, kann nicht ausgemacht werden.

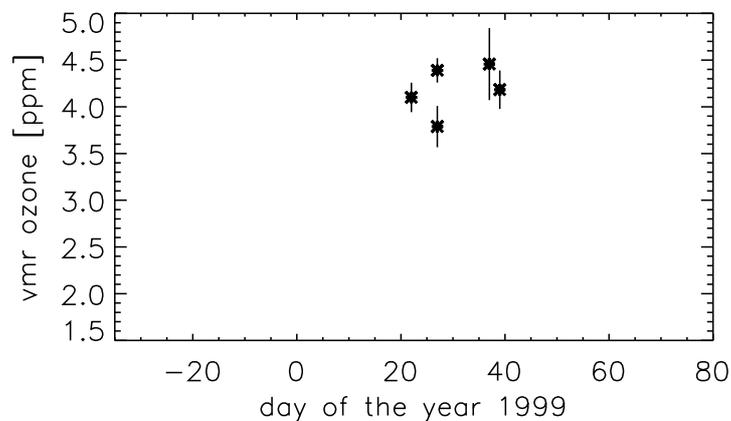


Abbildung 5.6: Entwicklung der Ozonvolumenmischungsverhältnisse (VMR) in ppm im Winter 1998/1999 gemessen von ASUR als Funktion vom Tag des Jahres 1999, auf der 475 K Isentrope. Der 31. Dezember 1998 wurde als Tag Null gewählt. Die einzelnen Messungen innerhalb des Vortex wurden jeweils über einen Meßflug gemittelt.

Im Gegensatz dazu ist die Variation während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne (Abbildung 5.7) weit geringer innerhalb der jeweiligen Teilkampagnen. Die Mischungsverhältnisse streuen während der ersten beiden Teilkampagnen

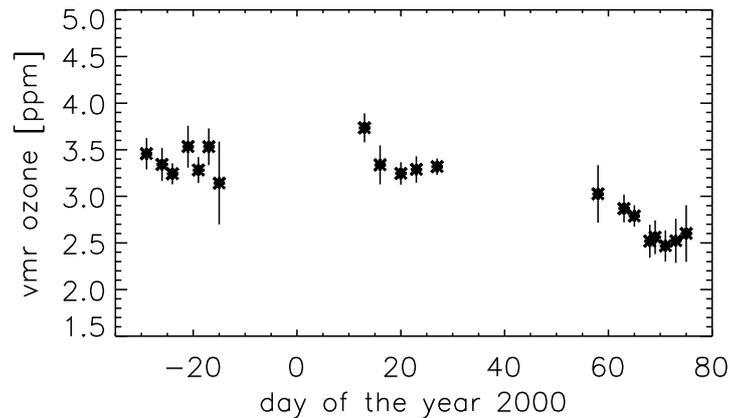


Abbildung 5.7: Entwicklung der Ozonvolumenmischungsverhältnisse (VMR) in ppm im Winter 1999/2000 gemessen von ASUR als Funktion vom Tag des Jahres 2000, auf der 475 K Isentrope. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt. Die einzelnen Messungen innerhalb des Vortex wurden jeweils über einen Meßflug gemittelt.

um ungefähr den selben Mittelwert. Im März 2000 ist eine deutliche Abnahme gegenüber den Vormonaten zu erkennen. Ebenfalls wurde eine Abnahme zwischen den einzelnen Meßflügen innerhalb der März Teilkampagne beobachtet, die auf eine fortwährende Abnahme im Ozon zurückzuführen ist.

Der Vergleich der beiden Winter zeigt, dass die Flugmittelwerte der Ozonmischungsverhältnisse im Winter 1998/1999 auf der 475 K Isentrope im Schnitt um 0,7 ppm höher waren als im vergleichbaren Zeitraum des Winters 1999/2000.

## 5.4 Bestimmung des Vortexrandes aus Tracer-Messungen

Die chemische Stabilität von  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CH}_3\text{Cl}$  in der unteren Stratosphäre kann für eine Abschätzung des inneren und äußeren Vortexrandes herangezogen werden.

$\text{N}_2\text{O}$  besitzt in der Atmosphäre keine Quellen, sondern wird von Bakterien freigesetzt beziehungsweise anthropogen erzeugt (zum Beispiel durch die Verbrennung von Öl und Kohle). Die lange troposphärische Lebensdauer von mehr als 100 Jahren (Nakazawa et al. (1997)) ermöglicht einen Transport in die Stratosphäre. Unterhalb einer Höhe von 33 km beträgt die Lebensdauer immer noch mehr als ein Jahr (WMO (1986)). In größeren Höhen überwiegt die Photolyse

von  $N_2O$ , was zu einem sehr schnellem Abfall der Volumenmischungsverhältnisse führt (vergleiche zum Beispiel Abbildung 5.2).

Methylchlorid ( $CH_3Cl$ ) wird hauptsächlich von natürlichen Quellen am Erdboden erzeugt. Die chemische Stabilität, sowie die lange Lebensdauer von etwa 50 Jahren (WMO (1992)) in der Troposphäre und unteren Stratosphäre ermöglichen den Transport des Spurenstoffes bis in die Stratosphäre. Die Photolyse von  $CH_3Cl$  in großen Höhen gilt als signifikante Quelle von natürlichem stratosphärischen Chlor (Hsu und DeMore (1994)). Die mit  $N_2O$  vergleichbaren chemischen Eigenschaften, sowie die lange Lebensdauer machen  $CH_3Cl$  ebenso wie  $N_2O$  zu einem Tracer für dynamische Veränderungen in der unteren Stratosphäre.

Betrachtet man die Mischungsverhältnisse der beiden Spurenstoffe bei einer konstanten potentiellen Temperatur, so zeigen Messungen innerhalb des Vortex geringere Mischungsverhältnisse als außerhalb. Für die Bestimmung des Vortexrandes wird ein Polynom dritten Grades an die Meßpunkte angepaßt. Die Orte der maximalen Krümmung ergeben dann den inneren und äußeren Rand.

Für Vergleichszwecke werden Berechnung des inneren und äußeren Vortexrandes nach dem Kriterium von Nash et al. (1996) herangezogen. Die Ränder werden aus der potentiellen Wirbelstärke in Abhängigkeit von der äquivalenten Breite bestimmt. Die Einbeziehung der Windstärke entlang der PV Isolinien stabilisiert die Berechnung. Die Maxima der zweiten Ableitung der PV ergeben den inneren und äußeren Rand.

### Winter 1998/1999

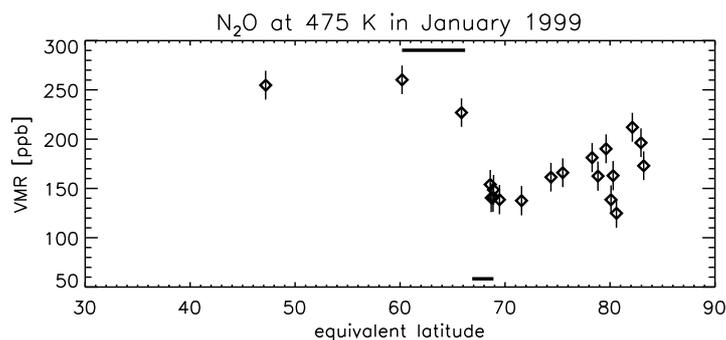


Abbildung 5.8: Sämtliche  $N_2O$ -Messungen von ASUR im Winter 1998/1999. Die  $N_2O$ -Volumenmischungsverhältnisse (VMR) in [ppb], auf der 475 K Isentrope, sind als Funktion der äquivalenten Breite dargestellt. Die schwarzen Balken geben den aus den Messungen abgeschätzten Bereich für den äußeren und inneren Vortexrand wieder.

Die Darstellung der Einzelmessungen auf der 475 K Isentrope in Abbildung 5.8 zeigt eine große Variation der einzelnen Messungen innerhalb des Vortex. Dies deutet auf einen nicht sehr gut durchmischten Vortex während der Meßperiode hin, da die Meßwerte um einen konstanten Mittelwert streuen sollten. Es ist jedoch eine grundsätzliche Unterscheidung zwischen den Meßpunkten innerhalb und außerhalb des Vortex möglich.

Die Messungen ergeben für den inneren Rand einen Wert zwischen  $67^\circ$  und  $69^\circ$  äquivalenter Breite. Der äußere Rand läßt sich auf Grund der geringen Anzahl von Meßpunkten nicht genau bestimmen. Es läßt sich jedoch ein ungefährender Bereich zwischen  $60^\circ$  und  $66^\circ$  abschätzen.

Die Berechnungen nach Nash et al. (1996) ergeben für den inneren Rand einen Bereich zwischen  $65^\circ$  und  $67^\circ$  während der Meßkampagne. Die Werte sind somit geringfügig kleiner als aus der  $\text{N}_2\text{O}$ -Abschätzung.

### **Winter 1999/2000**

Die  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen des Winters 1999/2000 (Abbildung 5.9) ermöglichen eine sehr gute Unterscheidung zwischen Bereichen innerhalb und außerhalb des Vortex. Es ist zu erkennen, daß sich der Bereich, in dem die  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen niedrige Mischungsverhältnisse aufweisen, mit fortschreitender Zeit verkleinert und zu größeren äquivalenten Breiten hin verschiebt. Dies ist gleichbedeutend mit einer Abnahme der Fläche, die der Vortex bedeckt. Die Abschätzung des äußeren Vortexrandes ist auf Grund der geringen Anzahl von Messungen über den Rand hinweg für Dezember 1999 und Januar 2000 nur schwer möglich. Für März 2000, durch die höhere Anzahl von Einzelmessungen über den Rand hinweg, ergibt sich ein Wert von  $56^\circ$  bis  $57^\circ$  äquivalenter Breite.

Aus den Ergebnissen der  $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Einzelmessungen, dargestellt auf der 475 K Isentrope in Abhängigkeit der äquivalenten Breite, in Abbildung 5.10 läßt sich für Dezember 1999 und Januar 2000 keine Aussage über den Vortexrand treffen. Im März 2000 zeigen die Messungen für eine äquivalente Breite kleiner als  $70^\circ$  eine sehr große Variation, die größer ist als die von den  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen gezeigte. Die Variation für eine äquivalente Breite größer  $70^\circ$  ist ungefähr im Rahmen der Fehler der Einzelmessungen. Trotzdem ist beim Übergang in den Vortex hinein ein Absinken der Luftmassen zu erkennen.

Tabelle 5.1 zeigt eine Übersicht der äquivalenten Breite für den inneren und äußeren Vortexrand, jeweils für  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_3\text{Cl}$  und die Berechnung nach Nash et al. (1996).

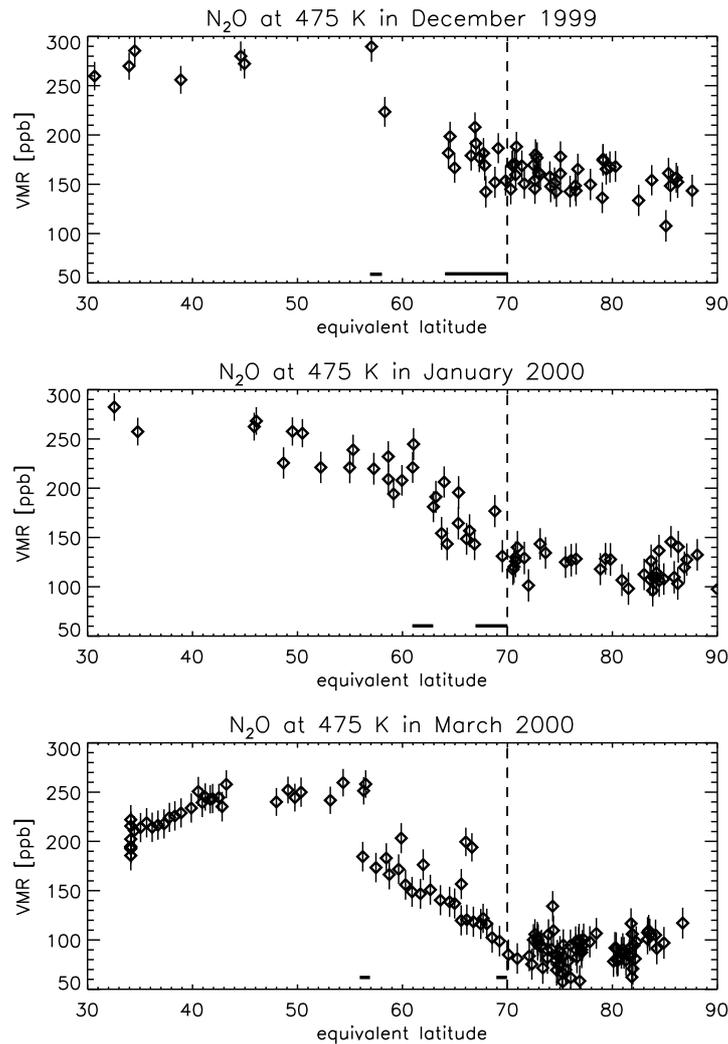


Abbildung 5.9: Sämtliche N<sub>2</sub>O-Messungen von ASUR im Winter 1999/2000. Die N<sub>2</sub>O-Volumenmischungsverhältnisse (VMR) in [ppb], auf der 475 K Isentrope, sind als Funktion der äquivalenten Breite dargestellt. Die gestrichelte Linie bei 70° äquivalenter Breite entspricht dem inneren Vortexrand nach Nash et al. (1996) während der drei Teilkampagnen. Oben: Dezember 1999, Mitte: Januar 2000, unten: März 2000. Die schwarzen Balken geben den aus den Messungen abgeschätzten Bereich für den äußeren und inneren Vortexrand wieder.

Der Vergleich mit der Berechnung nach Nash et al. (1996) zeigt vor allem, daß die Werte für den inneren Rand besser übereinstimmen. Dies ist teilweise darauf zurückzuführen, daß nur weniger Messungen über den Rand hinweg, oder außerhalb des Vortex durchgeführt wurden. Für eine genauere Abschätzung müßte die Zahl der Messungen in der Nähe des Randes und über ihn

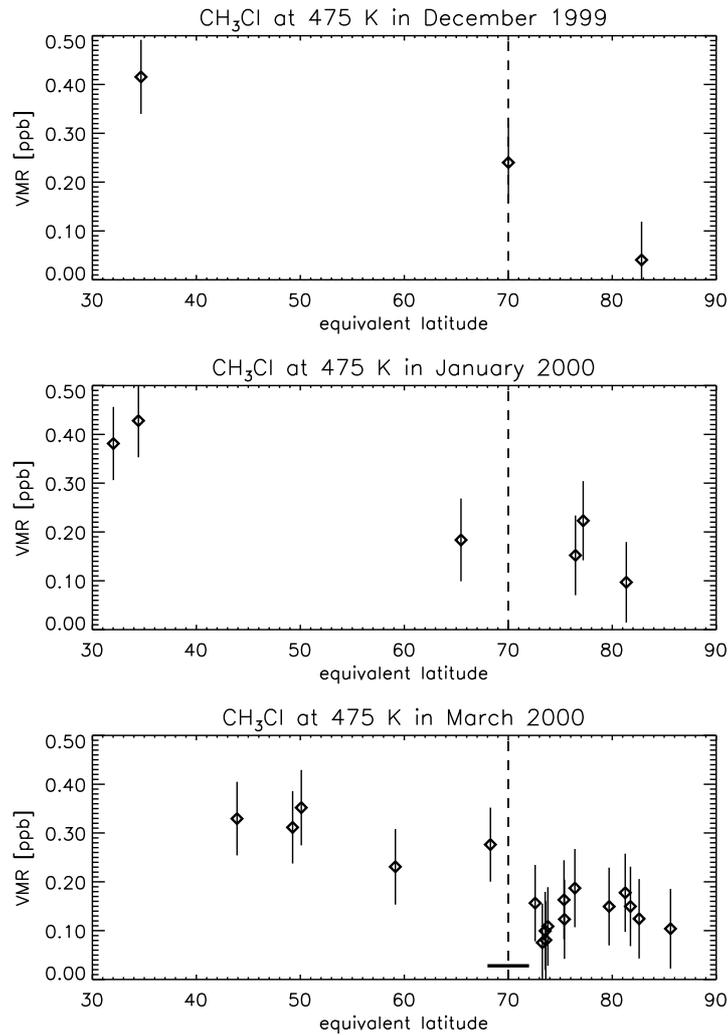


Abbildung 5.10: Sämtliche  $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Messungen von ASUR im Winter 1999/2000. Die  $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Volumenmischungsverhältnisse (VMR) in [ppb], auf der 475 K Isentrope, sind als Funktion der äquivalenten Breite dargestellt. Die gestrichelte Linie bei  $70^\circ$  äquivalenter Breite entspricht dem inneren Vortexrand nach Nash et al. (1996) während der drei Teilkampagnen. Oben: Dezember 1999, Mitte: Januar 2000, unten: März 2000. Die schwarzen Balken geben den aus den Messungen abgeschätzten Bereich für den äußeren und inneren Vortexrand wieder.

hinweg erhöht werden. Die in Abbildung 5.9 und Abbildung 5.10 eingezeichneten gestrichelten Linien bei  $70^\circ$  äquivalenter Breite entsprechen einer konservativen Wahl des inneren Vortexrandes für alle drei Teilkampagnen. Dies wird sowohl durch die Berechnung nach Nash et al. (1996), als auch die  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen bestätigt.

Tabelle 5.1: Übersicht der äquivalenten Breite für den inneren (in) und äußeren (out) Vortexrand im Winter 1999/2000. Die Bezeichnung „Nash“ steht für die nach Nash et al. (1996) berechneten Mittelwerte für den Randbereich während der Teilkampagnen.

|                    | Dez<br>out | Dez<br>in | Jan<br>out | Jan<br>in | Mär<br>out | Mär<br>in |
|--------------------|------------|-----------|------------|-----------|------------|-----------|
| N <sub>2</sub> O   | 57-58      | 64-70     | 61-63      | 67-70     | 56-57      | 69-70     |
| „Nash“             | 59         | 70        | 60         | 67        | 63         | 70        |
| CH <sub>3</sub> Cl |            |           |            |           |            | 68-72     |

## 5.5 Zusammenfassung

In den Wintern 1998/1999 und 1999/2000 wurde jeweils eine Meßkampagne durchgeführt. Die Randbedingungen beider Kampagnen unterscheiden sich jedoch grundlegend. Die 1998/1999 Meßkampagne beschränkte sich auf einen kurzen Zeitraum von zweieinhalb Wochen, wohingegen die 1999/2000 Meßkampagne mit drei dreiwöchigen Teilkampagnen den gesamten Winter von Anfang Dezember bis Mitte März abdeckte. Desweiteren waren die meteorologischen Bedingungen der beiden Winter sehr unterschiedlich: der Winter 1998/1999 war einer der wärmsten Winter (in der Stratosphäre) der letzten 10 Jahre, während der Winter 1999/2000 einer der kältesten der letzten 10 Jahre war. Wenig verwunderlich sind daher die stark unterschiedlichen Meßergebnisse, wie sie vor allem in den Ozonmessungen beobachtet werden konnten.

Die Ozonmessungen im Januar/Februar 1999 zeigten innerhalb des Vortex höhere Mischungsverhältnisse, als sie im darauffolgenden Winter im entsprechenden Zeitraum beobachtet werden konnten. Der Vortex hatte sich im Winter 1998/1999 zwar früh im Dezember gebildet, doch sorgten starke Erwärmungsphasen für eine starke Abschwächung, wodurch der Transport von Luftmassen über den Vortexrand ermöglicht wurde.

In den N<sub>2</sub>O-Messungen zeigt sich ein entsprechendes Verhalten, mit einem weniger stark ausgeprägtem Absinken der Luftmassen innerhalb des Vortex als im darauffolgenden Winter.

Dies erklärt auch die um 0,7 ppm höheren Ozonmischungsverhältnisse auf der 475 K Isentrope im Januar/Februar 1999, die auf Einmischung von ozonreicher Luft, sowie geringeres Absinken der Luftmassen zurückzuführen sind.

Die Messungen im Winter 1999/2000 zeigen einen signifikanten Ozonver-

lust in der unteren Stratosphäre zwischen Januar und März 2000. Da aus den Ozonmessungen alleine nur eine ungenau Abschätzung über das Maß des Verlustes getroffen werden kann, wird dieses Thema in Kapitel 8 eingehender untersucht. Hierzu werden dynamische Korrekturen mit herangezogen, die das Absinken der Luftmassen innerhalb des Vortex berücksichtigen. Für die Bestimmung des Absinkens werden unter anderem ASUR N<sub>2</sub>O-Messungen verwendet, siehe Kapitel 7.

Die N<sub>2</sub>O-Messungen während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne haben verdeutlicht, daß mit einer größeren Anzahl von Einzelmessungen über den Vortexrand hinweg Aussagen über die Lage des Randes abgeleitet werden können.

Die erstmals von ASUR durchgeführten Messungen von CH<sub>3</sub>Cl während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne zeigen, daß für eine sinnvolle Ergänzung der N<sub>2</sub>O-Messungen die Zahl der einzelnen Messungen erhöht werden müßte. Auf Grund der schwachen Linienstärke sind die maximal 13 Einzelmessungen im März 2000 innerhalb des Vortex als unterste Grenze für eine Statistik anzusehen.

## 6 Vergleiche mit anderen Instrumenten

In diesem Kapitel werden Vergleiche von Ozon,  $N_2O$  und  $CH_3Cl$  Messungen von ASUR, die während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne aufgenommen wurden, mit anderen Instrumenten gezeigt. Im ersten Teil des Kapitels werden die Instrumente, deren Daten für die Vergleiche herangezogen werden, kurz vorgestellt. Im zweiten Teil erfolgt die Präsentation der eigentlichen Vergleiche.

### 6.1 Beschreibung der Instrumente

Nachfolgend sollen hier die Instrumente und deren Funktionsweise erläutert werden, von denen Messungen für Vergleiche herangezogen worden sind. Dies sind im einzelnen für Ozonmessungen: Sonden, zwei amerikanische, flugzeuggetragene Lidar-Instrumente (DIAL und AROTEL), sowie das bodengebundene Bremer Mikrowellenradiometer (RAM). Die  $N_2O$ -Messungen wurden mit dem ballongetragenen Mark IV-Instrument, sowie einem vereinheitlichten Satz von  $N_2O$ -Messungen verschiedener Instrumente an Bord der *ER-2* verglichen. Für die  $CH_3Cl$ -Messungen standen nur Mark IV-Messungen für einen Vergleich zur Verfügung.

#### 6.1.1 Ozonsonden

Es gibt zwei verschiedene Typen von Ozonsonden: die Brewer-Mast-Sonden (Brewer und Milford (1960)), sowie die ECC-Sonden (*electrochemical-concentration-cell*, Komhyr (1969)). Während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne wurden eine Vielzahl von Sondenstarts von einer Reihe von Bodenstation aus durchgeführt, zu denen auch die Koldewey-Station in Ny-Ålesund, Spitzber-

gen gehörte. Die hier verwendeten Sonden arbeiten nach dem ECC-Prinzip. Da die meisten Vergleiche mit Sonden gestartet von Ny-Ålesund aus durchgeführt wurden, beschränkt sich die Erklärung der Funktionsweise auf den dort verwendeten Typen.

Die ECC-Sonde besteht aus zwei Kammern mit unterschiedlicher Kaliumjodidlösung. Die Umgebungsluft wird mit Hilfe einer Pumpe in die Kammern befördert. Dort reagiert das Ozon mit dem Kaliumjodid und setzt dabei zwei Elektronen frei. Der gemessene Strom dient somit als direktes Maß für die Anzahl der Ozonmoleküle in der Umgebungsluft. Die Pumpleistung muß zu Beginn der Messung kalibriert werden, ebenso wie die Abnahme der Leistung bei zunehmender Höhe, auf Grund des abnehmenden Druckes, berücksichtigt werden muß.

Die vertikale Auflösung beträgt etwa 150 m und ist abhängig von der Reaktionsgeschwindigkeit des Ozons mit Kaliumjodid. Die Genauigkeit, mit der eine Messung wiederholt werden kann, liegt unter 5%. Für weitere Ausführung sei hier auf Komhyr (1969) und Komhyr et al. (1995) verwiesen.

Ozonsonden werden an einen Ballon angebracht und erreichen in der Regel eine maximale Höhe von 30 km. Sie werden außerdem meist zusammen mit Radiosonden gestartet, die meteorologische Parameter wie Druck, Temperatur und Luftfeuchte messen.

### 6.1.2 DIAL

Das *UV Differential Absorption Lidar* (DIAL) wird zur Bestimmung von Aerosolen, Wolken und Ozonprofilen oberhalb eines Flugzeuges genutzt (Browell et al. (1998)). Es wird von dem *Langley Research Center* der NASA unterhalten und wurde im Rahmen der THESEO 2000/SOLVE Kampagne auf der DC-8 betrieben.

Das Meßprinzip zur Bestimmung von Ozon beruht darauf, daß Strahlung zweier Wellenlängen in die Atmosphäre abgestrahlt wird. Die Wellenlängen werden so gewählt, daß Ozon die eine Wellenlänge möglichst stark, die andere jedoch möglichst gering absorbiert. Die zurückgestreuten Signale werden mit einem Teleskop eingefangen und aufgezeichnet. Das Verhältnis der zurückgestreuten Signale der schwach und der stark absorbierten Wellenlänge ermög-

licht die Bestimmung von Ozonkonzentrationen. Die Höhenabhängigkeit wird durch die Laufzeit der zurückgestreuten Signale gegeben.

Die Bestimmung der Aerosole erfolgt über ihre unterschiedlichen Rückstreuungseigenschaften bei den verschiedenen Wellenlängen, sowie durch die teilweise Änderung der Polarisationsrichtung der zurückgestreuten Signale. Eine Klassifizierung der optischen Eigenschaften verschiedener PSC-Typen und damit auch verschiedener Aerosol-Typen ist zum Beispiel in Browell et al. (1990) gegeben.

Bei dem DIAL-System erzeugen zwei Laser 5 Lichtpulse bei 300, 310, 600, 620 und 1064 nm. Die Wellenlängen im UV werden für die Ozonmessungen verwendet, während die Wellenlängen im sichtbaren und infraroten für Wolken und Aerosol Bestimmung genutzt werden. Die Messungen werden in Zenitrichtung durchgeführt und erreichen eine maximale Höhe von 10 bis 15 km oberhalb des Flugzeuges (eine geometrischen Höhe von etwa 20 bis 25 km). Oberhalb dieser Meßhöhe ist die Intensität der zurückgestreuten Impulse zu gering um vom Instrument detektiert zu werden. Die vertikale Auflösung wird mit etwa 750 m, die horizontale Auflösung mit etwa 70 km (entsprechend 5 Minuten) für Ozon angegeben. Der Fehler der Ozoneinzelmessung ist kleiner als 10% des Absolutwertes. Für weitere Information sei hier auf Browell et al. (1998) verwiesen.

### 6.1.3 AROTEL

Das vom *Goddard Space Flight Center* der NASA betriebene *Airborne Raman Ozone and Temperature Lidar* (AROTEL) führt neben Ozon- auch Temperaturmessungen durch. Es war ebenfalls, wie das DIAL-Instrument auf der installiert.

Das Meßprinzip der Ozonmessungen ist dasselbe, wie es bei dem DIAL-Instrument verwendet wird. Daher sei hier auf den vorherigen Abschnitt verwiesen (Kapitel 6.1.2).

Bei der Temperaturmessung wird ausgenutzt, daß die zurückgestreuten Signale direkt proportional zu der Teilchenzahldichte ist. Durch die Annahme, daß sich die gemessene Atmosphäre im hydrostatischem Gleichgewicht befindet, kann aus dem idealen Gasgesetz und der Teilchenzahldichte die Tempera-

tur errechnet werden. Eine genauere Beschreibung der Funktionsweise und des Instrumentes selber ist in Heaps und Burris (1996) nachzulesen.

Wie auch im DIAL-Instrument erzeugen zwei Laser die benötigten Wellenlängen von 308, 355, 532 und 1064 nm. Die Laser werden in Zenitrichtung betrieben. Die beiden Wellenlängen im UV werden für die Ozonmessungen verwendet, die eine maximale Meßhöhe von 35 bis 40 km erreichen sollen. Oberhalb der maximalen Meßhöhe ist die Intensität der zurückgestreuten Impulse für eine Detektion zu gering. Die vertikale Auflösung variiert zwischen 0,5 und 1,5 km, je nach Höhe und Integrationszeit. Die horizontale Auflösung liegt bei etwa 2 Minuten und der Meßfehler in den Einzelmessungen bei unter 10%. Für weiterführende Information sei hier auf Heaps und Burris (1996) und McGee et al. (1995) verwiesen.

### 6.1.4 RAM

Das Radiometer für Atmosphärenphysikalische Messungen (RAM) der Universität Bremen ist ein bodengebundenes Instrument, das in der, vom Alfred-Wegener-Institut unterhaltenen Koldewey-Station in Ny-Ålesund, Spitzbergen stationiert ist. Von dort aus werden seit 1994 ganzjährig Messungen von Ozon und ClO durchgeführt. Seit einer Erweiterung des Instrumentes im Jahre 1999 erfolgen zusätzlich Messungen von Wasserdampf.

Das RAM-Instrument ist ein Radiometer, das die thermische Emission von Ozon bei 142 GHz, ClO bei 208 GHz und Wasserdampf bei 22 GHz detektiert. Es ist in seinem Aufbau dem ASUR-Instrument vergleichbar, besitzt jedoch für jedes der detektierbaren Moleküle ein eigenständiges, speziell angepaßtes *frontend*.

Die Meßmethode ähnelt ebenfalls der des ASUR-Instruments, doch wird hier für ClO und Wasserdampf eine Referenzstrahlmethode verwendet. Sie basiert auf dem Vergleich der Messung zweier Signale, die bei unterschiedlichen Elevationswinkeln aufgenommen werden: des eigentlichen Meßsignals, sowie eines Referenzsignals. Die Referenzmessung wird bei einem kleineren Zenitwinkel durchgeführt und das Signal zusätzlich durch eine Plexiglasscheibe erhöht. Durch die geeignete Wahl des Elevationwinkels des Meßsignals, werden die beiden Intensitäten so abgeglichen, daß sie für einen bestimmten Bereich des

Spektrums, außerhalb der Linienmitte gleich groß sind. Die Plexiglasscheibe simuliert dabei den längeren Weg des Meßsignals durch die Troposphäre.

Für ausführlichere Informationen über das RAM-Instrument sei hier auf Klein (1993), sowie für die Erweiterung auf Wasserdampf-Linie im Jahre 1999 auf Lindner et al. (1999) verwiesen.

### 6.1.5 Mark IV

Das Mark IV-Instrument wurde 1984 am *Jet Propulsion Laboratory* gebaut. Während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne führte es zwei ballongetragene Meßflüge über Nordskandinavien durch.

Mark IV ist ein hochauflösendes Fourier Transform Infrarot (FTIR) Spektrometer. Es mißt die direkte solare Absorption verschiedener Spurenstoffe. Die Konzentration wird für die unterschiedlichen Höhen aus der Linienform und der Absorptionsstärke bestimmt. Das Instrument überdeckt einen Wellenzahlbereich von 650 bis 5650  $\text{cm}^{-1}$ . Dabei werden Signaturen von mehr als 30 verschiedenen Spurenstoffen aufgezeichnet, unter anderem auch  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CH}_3\text{Cl}$ .

Das Experiment besitzt eine vertikale Auflösung von 2 bis 3 km bei einer maximalen Flughöhe von etwa 30 km. Die horizontale Auflösung beträgt auf Grund der Meßtechnik etwa 400 km. Die Meßgenauigkeit variiert mit der Meßhöhe und dem Spurenstoff und beträgt in der Regel zwischen 5% und 10% des gemessenen Wertes.

Die beiden Meßflüge, die während des Winters 1999/2000 durchgeführt wurden fanden bei Sonnenuntergang (3. Dezember 1999) beziehungsweise Sonnenaufgang (15. März 2000) statt, da für Messungen in solarer Okkultation die Meßempfindlichkeit des Verfahrens am größten ist.

Nähere Ausführungen über das Instrument sind zum Beispiel in Toon (1991) nachzulesen.

### 6.1.6 *ER-2 unified* $\text{N}_2\text{O}$

Der vereinheitlichte (*unified*)  $\text{N}_2\text{O}$ -Datensatz stellt eine Zusammenfassung der Messungen von vier Instrumenten dar. Dies sind im Einzelnen: ACATS IV,

ALIAS, Argus und WAS, die alle während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne Messungen von Bord der NASA *ER-2* aus durchführten.

ACATS IV (*Airborne Chromatograph for Atmospheric Trace Species IV*; Romashkin et al. (2001)) und WAS (*Whole Air Sampler*; Schaufler et al. (1999)) sind *in situ* Instrumente. In beide Geräte wird Außenluft angesaugt, die gaschromatographisch untersucht wird. Im Falle des WAS-Instrumentes findet diese Untersuchung jedoch nicht während des Fluges statt. Stattdessen werden bis zu 32 Kanister mit der angesaugten Luft gefüllt und später untersucht.

Bei Argus (*Argus Tunable Diode Laser Instrument*; Jost et al. (1998)) und ALIAS (*Aircraft Laser Infrared Absorption Spectrometer*; Webster et al. (1994)) handelt es sich um zwei laserbetriebene Infrarot-Spektrometer.

Das Ziel war, aus der Zusammenführung der vier Datensätze einen möglichst genauen und zuverlässigen  $N_2O$ -Datensatz mit einer zeitlichen Auflösung von 10 Sekunden für jeden *ER-2* Flug zu konstruieren (Hurst et al. (2001)).

Als mittlere Fehler für jeden „Meßpunkt“ wird ein Bereich von 2.0 bis 12.2 ppb  $N_2O$  angegeben. Die Variation basiert auf der Meßgenauigkeit des jeweiligen Instruments, dessen Messung für den jeweiligen „Meßpunkt“ berücksichtigt wurde.

Eine detaillierte Beschreibung der Methodik, sowie des vereinheitlichten Datensatzes an sich wird in Hurst et al. (2001) gegeben.

## 6.2 Vergleiche

Im Folgenden werden Profilvergleiche zwischen ASUR-Messungen und den Ergebnissen der zuvor beschriebenen Instrumente präsentiert. Um der Vielzahl der Einzelmessungen von Ozon Rechnung zu tragen wurden für den Ozonvergleich zwischen ASUR, DIAL, AROTEL und den Sonden die mittlere Abweichung bestimmt. Für jede Teilkampagne erfolgt zusätzlich ein exemplarischer Profilvergleich von Ozon.

### 6.2.1 Ozon

Die gleichzeitigen Messungen des ASUR-Instrumentes, sowie der Instrumente DIAL und AROTEL ergaben die einzigartige Situation, daß für fast jede Ozon-Messung von ASUR eine Vergleichsmessung mit einem der beiden Lidar-Geräte vorlag. Die Messungen von AROTEL und DIAL wurden für die Vergleiche über einen Zeitraum von 300 Sekunden gemittelt. Dies wurde als notwendig angesehen, da die Profile mit einer höheren zeitlichen Auflösung zur Verfügung standen, obwohl die eigentliche zeitliche Auflösung mit 2 bis 5 Minuten (je nach Instrument) angegeben wird. Der Umstand, daß die beiden Lidar in Zenitrichtung messen, wohingegen ASUR unter einem Zenitwinkel von  $78^\circ$  mißt, wurde nicht berücksichtigt. Durch die Meßgeometrie bedingt, beträgt der horizontale Versatz der ASUR-Messungen etwa 45 km, für eine Meßhöhe 10 km oberhalb des Flugzeuges gegenüber einer Zenitmessung. Für eine Meßhöhe von 20 km oberhalb der Flughöhe ist der Versatz entsprechend etwa 90 km. Es wurde davon ausgegangen, daß in der Regel die Ozonmischungsverhältnisse in solch kleinskaligen Bereichen innerhalb des Vortex als konstant angenommen werden können.

Neben AROTEL und DIAL bestanden auch in 16 Fällen Vergleichsmöglichkeiten mit Ozonsonden, sowie bei Überflügen über Spitzbergen mit dem bodengebundenen RAM-Instrument (drei Fälle).

Die Ozonprofile der Sondenmessungen, als auch von AROTEL und DIAL besitzen eine weitaus höhere vertikale Auflösung als die des ASUR-Instrumentes. Um diesem Umstand Rechnung zu tragen wurden diese Messungen auf die vertikale Auflösung von ASUR gefaltet (vergleiche hierzu Kapitel 3.3.3). Die Profile mußten dazu oberhalb der obersten Meßhöhe der Instrumente mit einem *a priori* Profil erweitert werden. Es hat sich gezeigt, daß der Meßbereich ab 5 km unterhalb der „Gipfelmeßhöhe“ der Instrumente durch die Wahl des *a priori* Profils bestimmt wird. Bei den RAM-Messungen ist dies nicht notwendig, da beide Instrumente bezüglich vertikaler Auflösung und Höhenbereich vergleichbar sind.

Abbildung 6.1 zeigt einen Vergleich mit AROTEL (a) und Sonden-Profilen (b), die bei einem Überflug über Ny-Ålesund am 12. Dezember 1999 durchgeführt wurde. Die AROTEL-Messungen zeigen bis zu einer Höhe von 24 km deutlich niedrigere Werte als ASUR. Oberhalb von 24 km wird die Abweichung geringer, doch beginnt bereits hier der Einfluß des angepaßten *a priori* Profils.

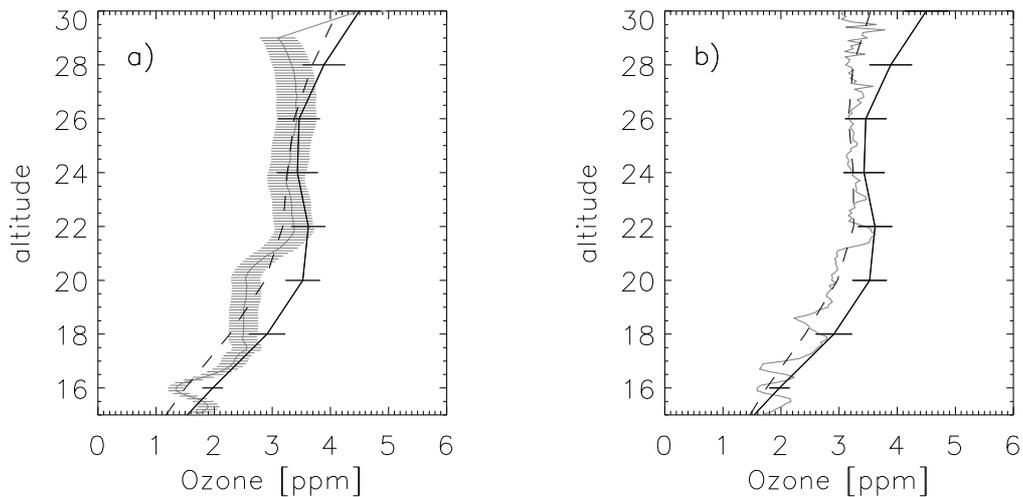


Abbildung 6.1: ASUR Ozonprofil (durchgezogene schwarze Linie) vom 12. Dezember 1999 über Ny-Ålesund im Vergleich zu zwei anderen Messungen vom gleichen Tag: AROTEL (a) und einem Sondenaufstieg (b). Hierbei ist jeweils die graue Linie: die originale Messung des zu vergleichenden Instrumentes, sowie die gestrichelte Linie das mit ASUR's vertikaler Auflösung geglättete Profil des zu vergleichenden Instrumentes. Der angegebene Fehler für ASUR ist der absolute Meßfehler. Für die Messungen der anderen Instrumente wurde der 1-sigma Fehler angegeben.

Im Vergleich mit der Sondenmessungen zeigt ASUR wiederum höhere Werte im Höhenbereich von 16 bis 20 km.

Der Vergleich vom 16. Januar 2000 ebenfalls über Ny-Ålesund (Abbildung 6.2) zeigt einen ähnlichen Sachverhalt. In dem Höhenbereich bis 20 km beobachten sowohl AROTEL (a), als auch DIAL (b) und RAM (d) deutlich niedrigere Ozonvolumenmischungsverhältnisse als ASUR. Die Ozonmessungen der Sonde (c) sind hingegen nur leicht geringer als die des ASUR-Instrumentes.

Am geringsten fallen die Abweichungen in der dritten Teilkampagne aus. Der Vergleich vom 11. März 2000 über Ny-Ålesund, in Abbildung 6.3 zeigt jedoch wiederum, sowohl für die beiden Lidar (a und b) als auch die Sondenmessungen (c) geringere Ozonmischungsverhältnisse gegenüber ASUR. Die RAM-Messung hingegen stimmt im Rahmen der Meßfehler bis zu einer Höhe von 24 km mit den ASUR-Messungen überein.

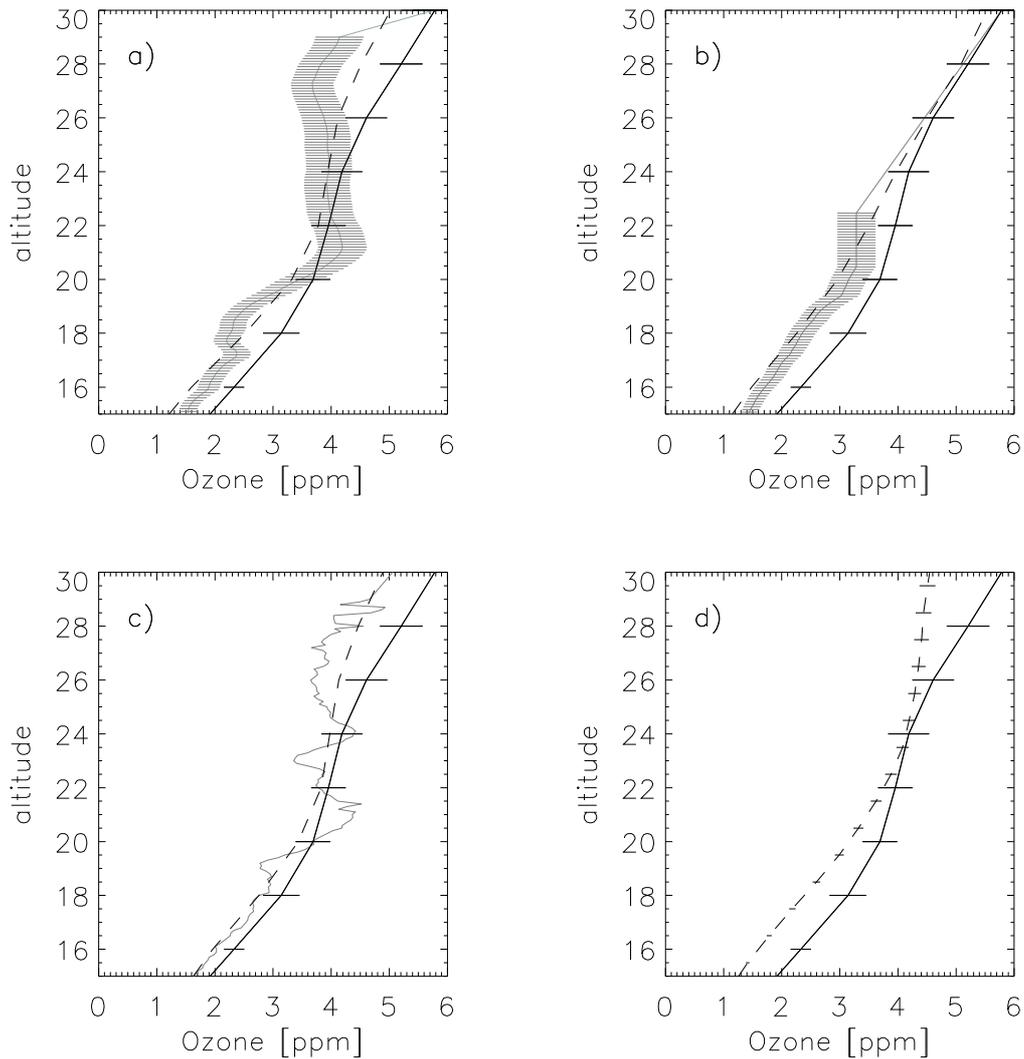


Abbildung 6.2: ASUR Ozonprofil (durchgezogene schwarze Linie) vom 16. Januar 2000 über Ny-Ålesund im Vergleich zu vier anderen Messungen vom gleichen Tag: AROTEL (a), DIAL (b), einem Sondenaufstieg (c) und RAM (d). Hierbei ist jeweils die graue Linie: die originale Messung des zu vergleichenden Instrumentes, sowie die gestrichelte Linie das mit ASUR's vertikaler Auflösung geglättete Profil des zu vergleichenden Instrumentes (mit Ausnahme der RAM-Messung). Der angegebene Fehler für ASUR ist der absolute Meßfehler. Für die Messungen der anderen Instrumente wurde der 1-sigma Fehler angegeben.

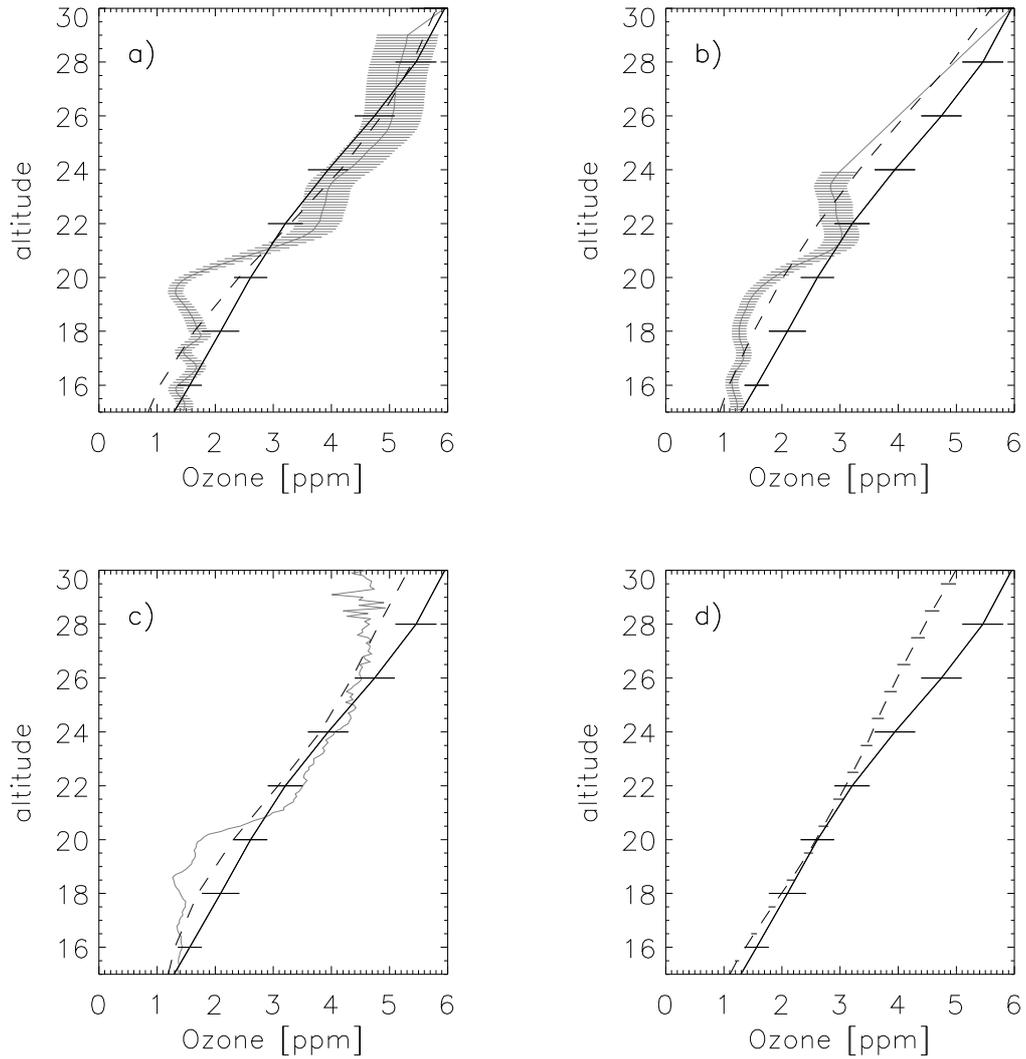


Abbildung 6.3: ASUR Ozonprofil (durchgezogene schwarze Linie) vom 11. März 2000 über Ny-Ålesund im Vergleich zu vier anderen Messungen vom gleichen Tag: AROTEL (a), DIAL (b), einem Sondenaufstieg (c) und RAM (d). Hierbei ist jeweils die graue Linie: die originale Messung des zu vergleichenden Instrumentes, sowie die gestrichelte Linie das mit ASUR's vertikaler Auflösung geglättete Profil des zu vergleichenden Instrumentes (mit Ausnahme der RAM-Messung). Der angegebene Fehler für ASUR ist der absolute Meßfehler. Für die Messungen der anderen Instrumente wurde der 1-sigma Fehler angegeben.

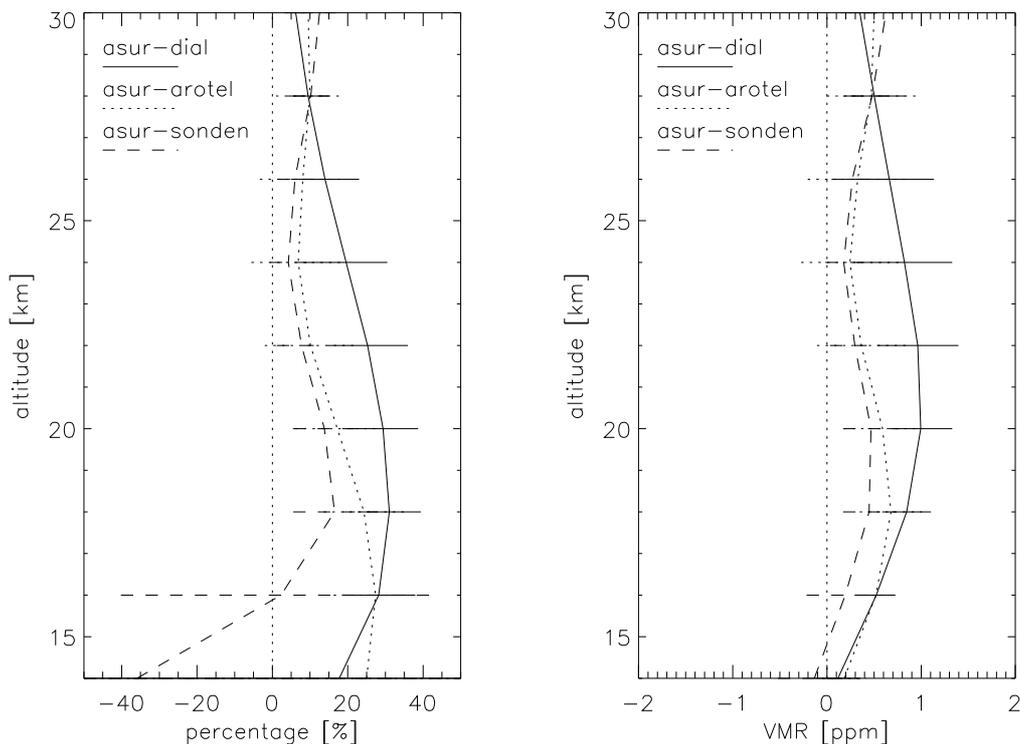


Abbildung 6.4: Mittelwert der Differenz aller vergleichbarer Ozonmessungen von ASUR gegenüber AROTEL, DIAL und Sondenmessungen. Auf der linken Seite die relative Differenz, auf der rechten Seite die absolute Differenz in [ppm].

Um der Vielzahl der Vergleichsmöglichkeiten Rechnung zu tragen, wurde eine mittlere Abweichung zwischen den ASUR-Messungen sowohl zu den Lidar-, als auch den Sondenmessungen bestimmt. Abbildung 6.4 zeigt die relative Abweichung auf der linken, sowie die absolute Abweichung auf der rechten Seite. Die ASUR-Messungen ergaben für alle Vergleiche eine positive Abweichung oberhalb von 16 km. Dies bedeutet, daß die von ASUR bestimmten Volumenmischungsverhältnisse für Ozon in allen Fällen größer waren als die der anderen drei Instrumente. Es ist anzunehmen, daß das Ozon in den ASUR-Messungen systematisch überschätzt wird. Die mittlere Abweichung zu den Sondenmessungen mit 5% bis 10% für einen Höhenbereich zwischen 16 und 25 km fällt am geringsten aus. Eine mittlere Abweichung von etwa 20% bis zu einer Höhe von 20 km gegenüber den DIAL-Messungen ist die größte in diesem Vergleich. Der Vergleich mit AROTEL zeigt Abweichungen um 20% unterhalb von 20 km sowie zwischen 5% und 10% oberhalb von 20 km. Die teilweise recht großen Abweichungen unterhalb von 16 km sind leicht durch

die geringen Volumenmischungsverhältnisse zu erklären, wodurch kleinere absolute Abweichungen einer hohen relativen Abweichung entsprechen können.

Ozonvergleiche von früheren Kampagnen zeigten in weiten Bereichen eine gute Übereinstimmung im Rahmen der Fehler mit Sonden und verschiedenen anderen Instrumenten (Urban (1997) und de Valk et al. (1997)). Doch wurden in diesen Fällen die Profile direkt verglichen, ohne vorheriges Anpassen der vertikalen Auflösung. Eine direkte Gegenüberstellung der Ergebnisse früherer Vergleiche ist somit nicht ohne weiteres möglich.

Der Vergleich von AROTEL mit Sondenmessungen zeigt eine relative Differenz in den Mischungsverhältnissen von 5% bis 10% für den Höhenbereich bis etwa 30 km. Hierbei sind die von AROTEL gemessenen Ozonwerte jedoch geringer als die Sondenmessungen. Die relative Abweichung zwischen DIAL und den Sonden beträgt im Mittel etwa 40%, um welche die DIAL-Meßwerte geringer ausfallen.

Die ASUR-Messungen zeigen zwar die größten Mischungsverhältnisse, doch die relative Abweichung gegenüber den Sondenmessungen entspricht der der AROTEL-Messungen. Die DIAL-Messungen zeigen die größte relative Abweichung gegenüber den Sondenmessungen.

### 6.2.2 N<sub>2</sub>O

Während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne wurden zwei Meßflüge mit dem ballongetragenen Mark IV-Instrument von der Raketenbasis ESRANGE aus durchgeführt. Der erste am 3. Dezember 1999, in der Aufbauphase des polaren Vortex und der zweite am Ende des polaren Winters, am 15. März 2000. Damit stellt die Mark IV-Messung im Dezember 1999 die einzige Vergleichsmöglichkeit überhaupt für den Spurenstoff N<sub>2</sub>O in der ersten Phase der Kampagne dar.

Für die hier gezeigten Vergleiche wird die chemische Stabilität von N<sub>2</sub>O in der unteren Stratosphäre ausgenutzt (siehe hierzu Kapitel 5.4).

Die DC-8 führte am 2. Dezember 1999, sowie am 15. März 2000 jeweils einen Meßflug durch. In dem Vergleich mit den Mark IV-Messungen wurden Vortexmittelwerte dieser beiden Flüge von ASUR N<sub>2</sub>O verwendet. Abbildung 6.5 zeigt diesen Vergleich. Auf der linken Seite (a) ist der erste Mark IV Flug vom 3. Dezember 1999, auf der rechten Seite (b) der zweite Flug vom

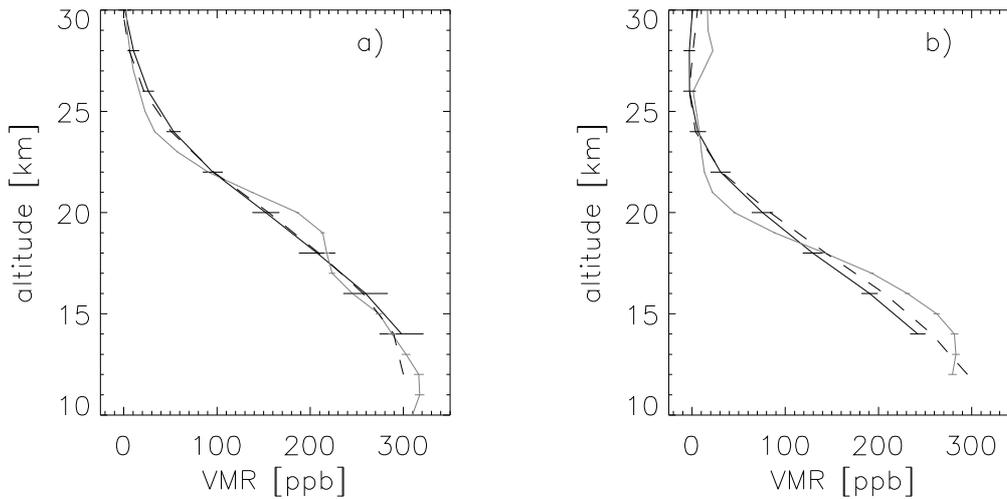


Abbildung 6.5: Vergleich von  $N_2O$ -Messungen zwischen ASUR und dem ballongetragenen Instrument Mark IV. Gezeigt sind die beiden Meßflüge von Mark IV: linke Seite: 3. Dezember 1999 (Sonnenuntergang) und rechte Seite: 15. März 2000 (Sonnenaufgang). Hierbei ist jeweils die durchgezogene schwarze Linie: vortexgemittelte ASUR-Messung, die graue Linie: Mark IV und die gestrichelte Linie: Mark IV geglättet mit ASUR's vertikaler Auflösung. Der angegebene Fehler ist bei ASUR die Standardabweichung des Mittelwertes und bei Mark IV der 1-sigma Fehler.

15. März 2000 gezeigt. Da die vertikale Auflösung der Mark IV-Messungen viele höher ist (graue Linie), als die von ASUR (durchgezogene schwarze Linie), wurden diese Messungen auf ASUR's Höhenauflösung geglättet (gestrichelte Linie). Der Vergleich zeigt für die Dezember Messungen eine sehr gute Übereinstimmung. Die März Messung von ASUR stimmt im Rahmen der Fehler ebenfalls gut mit dem geglätteten Mark IV-Profil für den gesamten Höhenbereich überein.

In Januar und März 2000 befand sich das Stratosphärenflugzeug *ER-2* der NASA zusammen mit der *DC-8* in Kiruna. Aus den  $N_2O$ -Messungen der verschiedenen Instrumente, die von der *ER-2* aus operierten, wurde ein vereinheitlichter Datensatz erstellt (vergleiche hierzu Kapitel 6.1.6). In Abbildung 6.6 ist ein Vergleich der Vortexmittelwerte der beiden Teilkampagnen im Januar (a) und März (b) 2000, zwischen ASUR und den *ER-2* Messungen dargestellt. Es wird jeweils der Vortexmittelwert wiedergegeben, mit der durchgezogenen schwarze Linie: ASUR, graue Linie: *ER-2*, gestrichelte Linie: *ER-2* Profil mit ASUR's Höhenauflösung geglättet. Der vereinheitlichte Datensatz zeigt mini-

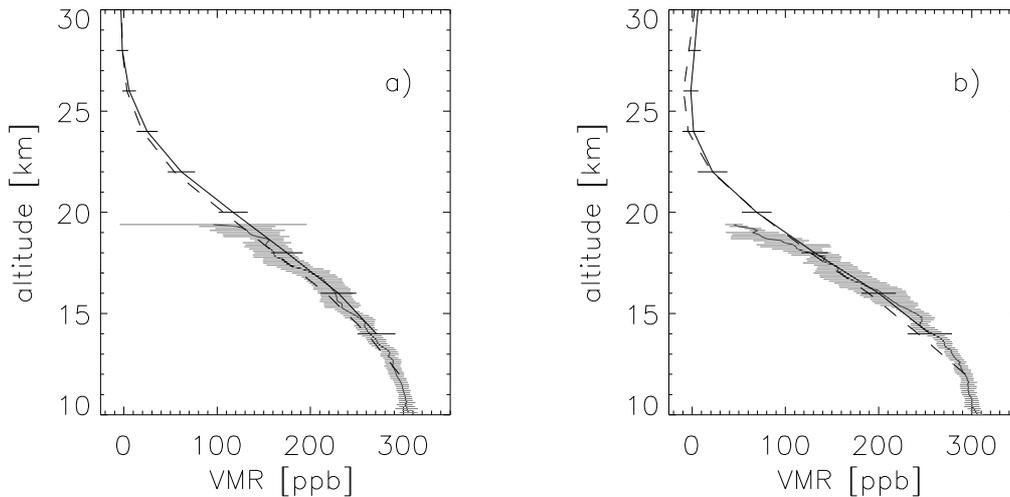


Abbildung 6.6: Vergleich von  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen zwischen ASUR und dem vereinheitlichten (*unified*) Datensatz der *ER-2*. Dargestellt sind Vortex-Mittelwerte für die Teilkampagnen im Januar 2000 (links) und März 2000 (rechts). Hierbei ist jeweils die durchgezogene schwarze Linie: ASUR, die graue Linie: das *unified ER-2*  $\text{N}_2\text{O}$  und die gestrichelte Linie: das *unified ER-2*  $\text{N}_2\text{O}$  geglättet mit ASUR's vertikaler Auflösung. Der angegebenen Fehler ist bei ASUR die Standardabweichung des Mittelwertes und für die *ER-2* Daten der 1-sigma Fehler.

mal geringere Meßwerte über den gesamten Höhenbereich für beide Teilkampagnen. Im Rahmen der Fehler stimmen die Ergebnisse jedoch gut überein.

Die ASUR-Messungen von  $\text{N}_2\text{O}$  zeigen somit auch nach der Instrumentenmodifikation 1998 eine gute Übereinstimmung mit Messungen anderer Instrumente, wie es bereits auch schon von de Valk et al. (1997) für frühere Jahre gezeigt wurde.

### 6.2.3 $\text{CH}_3\text{Cl}$

Das einzige Instrument, das im Winter 1999/2000 Profile von  $\text{CH}_3\text{Cl}$  gemessen hat und somit Vergleiche mit den ASUR-Messungen ermöglicht, war das Mark IV-Instrument. Wie bereits beschrieben, führte Mark IV zwei Meßflüge am 3. Dezember 1999 und 15. März 2000 über Nordskandinavien durch. Der Vergleich mit ASUR ist in Abbildung 6.7 gegeben. Dargestellt sind für ASUR die Vortexmittelwerte des 2. Dezember 1999 (links), beziehungsweise 15. März 2000 (rechts), jeweils als durchgezogenen schwarze Linie. Die graue

Linie gibt die Mark IV-Messung wieder, während die gestrichelte Linie die Glättung der Mark IV-Messung mit der Höhenauflösung von ASUR ist. Die eingezeichneten Fehler sind für ASUR: die Standardabweichung vom Mittelwert und für Mark IV: der 1-sigma Fehler. Die ASUR-Messungen zeigen höhere Werte bis zu einer Höhen von 25 km.

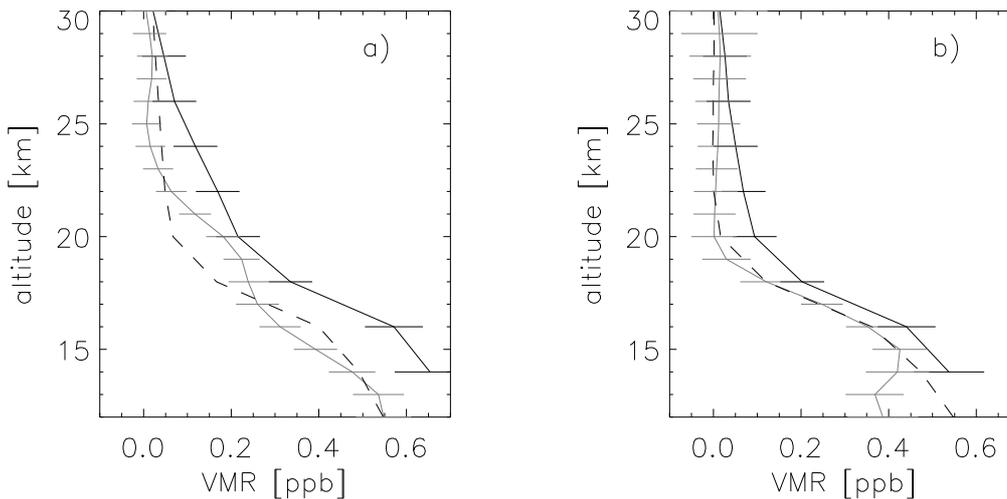


Abbildung 6.7: Vergleich zwischen  $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Messungen von ASUR und dem ballongetragenen Instrument Mark IV. Gezeigt sind die beiden Meßflüge von Mark IV: linke Seite: 3. Dezember 1999 (Sonnenuntergang) und rechte Seite: 15. März 2000 (Sonnenaufgang). Hierbei ist jeweils die durchgezogene schwarze Linie: vortexgemittelte ASUR-Messung, die graue Linie: Mark IV und die gestrichelte Linie: Mark IV geglättet mit ASURs vertikaler Auflösung. Der angegebenen Fehler ist bei ASUR die Standardabweichung des Mittelwertes und bei Mark IV der 1-sigma Fehler.

Die Mark IV-Profile zeigen außerdem bereits ab einer Höhe von 24 km im Dezember, beziehungsweise 20 km im März Mischungsverhältnisse von ungefähr Null. Diese werden in den ASUR-Messungen erst bei etwa 30 km in beiden Fällen beobachtet. Trotzdem stimmen die März-Messungen noch im Rahmen der Fehler für fast den gesamten Höhenbereich überein. Dies ist jedoch bei den Dezember-Messungen nicht gegeben. Andererseits weicht das Mark IV-Profil auch von der erwarteten Form (eine ähnliche Profilform wie im März) deutlich ab. Eine vergleichbar abweichende Profilform zeigt auch das Mark IV  $\text{N}_2\text{O}$ -Profil vom 3. Dezember 1999. Dieser Umstand konnte bisher noch nicht eindeutig geklärt werden. Die ASUR und die Mark IV-Messungen wurden in unterschiedlichen Bereichen des Vortex durchgeführt. Eine Störung

des Vortex durch Einmischung von Luftmassen aus mittleren Breiten und einer damit verbundenen unterschiedlichen Profilform im  $\text{CH}_3\text{Cl}$ , ist nicht auszuschließen. Diese Annahme wird auch von Untersuchungen zur Vortexstabilität (Kapitel 7.1) unterstützt, die Mischprozesse zu Beginn der Aufbauphase (Anfang Dezember 1999) zeigen.

### 6.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden für die Spurenstoffe Ozon,  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CH}_3\text{Cl}$  Vergleiche von ASUR-Messungen mit verschiedenen anderen Instrumenten präsentiert.

Der Vergleich der Ozonmessungen zeigte eine Überschätzung von 5% bis 10% in den ASUR-Messungen gegenüber Sondendaten. Die Form der Abweichung scheint typisch für Mikrowellenradiometrie zu sein und wurde auch schon von Langer (1999) beobachtet. Die Abweichung gegenüber den, ebenfalls an Bord der *DC-8* betriebenen, Lidar-Instrumenten AROTEL und DIAL fällt mit 5% bis 20% vergleichsweise hoch aus. Der Vergleich zwischen Lidar- und Sondendaten zeigt eine Unterschätzung der Mischungsverhältnisse gegenüber den Sonden um 5% bis 10% bei AROTEL und etwa 40% bei DIAL. Zusammenfassend zeigen die Messungen von ASUR, AROTEL und Sonden eine mittlere relative Abweichung von  $\pm 10\%$  untereinander. Die relative Abweichung der DIAL-Messungen fällt hingegen wesentlich größer aus.

Für den Vergleich der  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen von *ER-2*, Mark IV und ASUR wurden Tagesmittelwerte des Vortex (ASUR - Mark IV) und Vortexmittelwerte über die jeweilige Teilkampagne (ASUR - *ER-2*) verwendet. Die sehr gute Übereinstimmung der Messungen im Januar und März 2000 ist ein Indiz dafür, daß der Vortex in diesem Zeitraum gut durchmischt war.

Vergleiche von Messungen aus früheren Jahren mit anderen Instrumenten (zum Beispiel Urban (1997) und de Valk et al. (1997)) zeigen für Ozon und  $\text{N}_2\text{O}$  jeweils eine gute Übereinstimmung über weite Höhenbereiche im Rahmen der Meßfehler, doch wurden die höher aufgelösten Profile nicht auf ASUR's Höhenauflösung gefaltet. Die Ergebnisse sind somit nicht direkt vergleichbar.

$\text{CH}_3\text{Cl}$  wurde erstmals versuchsweise in der HIMSPEC Kampagne gemes-

sen. Die Spektren zeigten jedoch, daß für eine sinnvolle Auswertung die Meßdauer erhöht werden muß. Während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne wurden eine Reihe von  $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Messungen durchgeführt und ausgewertet. Für einen Profilvergleich lagen zwei Meßflüge des ballongetragenen Mark IV-Instrumentes vor. Die Vergleiche zeigen, daß die ASUR-Messungen jeweils höhere Volumenmischungsverhältnisse ergeben als Mark IV. Für den zweiten Ballonflug ist die Übereinstimmung jedoch noch im Rahmen der Fehler gegeben. Die Abweichungen gegenüber dem ersten Ballonflug können auf Einmischung von Luft aus mittleren Breiten zurück geführt werden, die in den ASUR-Daten beobachtet wurde (Kapitel 7.1). Da ein Mischen von Luft über den Vortexrand hinweg das Verhältnis zweier Tracer zueinander verändert, sollte die Variation von  $\text{N}_2\text{O}$ , auf Grund der höheren Lebensdauer, weniger ausgeprägt ausfallen. Dies wird auch durch den Vergleich der  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen von ASUR und Mark IV unterstützt, der eine sehr gute Übereinstimmung zeigt.

Für eine zuverlässige Validation der  $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Messungen lagen, mit nur zwei Messungen, zuwenig Vergleichsprofile vor. Weitere Messungen und Vergleiche in den kommenden Kampagnen müssen zeigen, ob sich  $\text{CH}_3\text{Cl}$  für die Erweiterung der Tracer-Messungen eignet, oder ob die Messungen von  $\text{N}_2\text{O}$  ausreichen müssen.



**Teil III**

**Diabatisches Absinken und  
chemischer Ozonverlust im Winter  
1999/2000**



## **7 Diabatisches Verhalten im Winter 1999/2000**

In den Wintermonaten kommt es innerhalb des polaren Vortex zu einem großskaligen Absinken der Luftmassen. Das Verständnis der dynamischen Prozesse, sowie die Abschätzung des diabatischen Absinkens der Luftmassen sind unumgänglich für das Verständnis und die Modellierung der Stratosphäre.

Für die Bestimmung des diabatischen Verhaltens (Bewegungen senkrecht zu den Isentropen) werden Messungen chemisch inerter Tracer herangezogen. Im letzten Jahrzehnt beschäftigte sich eine Reihe von Veröffentlichungen mit diesem Thema, unter anderem: Schoeberl et al. (1992), Crewell et al. (1995), Müller et al. (1997), Michelsen et al. (1998) und Manney et al. (2000). Dabei wurden Messungen der chemisch inerten Spurenstoffe  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$  und HF verwendet.

In diesem Kapitel soll eine Abschätzung des Absinkens der Luftmassen innerhalb des polaren Vortex im Winter 1999/2000 aus ASUR-Messungen gegeben werden. Hierzu werden neben Messungen von  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CH}_3\text{Cl}$ , aus Ozonmessungen berechnete Heiz-, beziehungsweise Kühlraten herangezogen. Ein Vergleich der beiden unterschiedlichen Methoden, mit Ergebnissen anderer Instrumente und mit dem SLIMCAT-Modells schließt das Kapitel.

Die Daten und Ergebnisse in Kapitel 7.1 und Kapitel 7.2.1 wurden teilweise aus Bremer et al. (2000) und Bremer et al. (2001) übernommen.

### **7.1 Stabilität des Vortex**

Für die Abschätzung des diabatischen Absinkens im Vortex wird dieser als abgeschlossene Einheit betrachtet. Eine Einmischung von Luftmassen aus mittleren Breiten in den Vortex hinein kann nur schwer berücksichtigt werden, da

sie die Mischungsverhältnisse der chemisch inerten Spurenstoffe verändert und somit zu einer Fehlinterpretation der Ergebnisse führen würde.

Wie bereits in Kapitel 4.2.1 beschrieben wurde, zeigte die Analyse von Manney und Sabutis (2000), daß sich der Vortex im Winter 1999/2000 erst zwischen Anfang und Mitte Dezember 1999 stabilisierte. Da die erste Teilkampagne der THESEO 2000/SOLVE Kampagne in diesem Zeitraum stattfand, wurden Tracer-Tracer Korrelationen und Berechnung der potentiellen Wirbelstärke mit der *reverse domain filling* Methode (RDF) untersucht, um die Abgeschlossenheit des Vortex zu gewährleisten.

### 7.1.1 Tracer-Tracer Korrelation

Die Korrelation zweier langlebiger Spurenstoffe von unterschiedlich langer Lebensdauer ermöglicht es, Aussagen über Mischprozesse von Luftmassen zu treffen.

In Abbildung 7.1 ist eine schematische Darstellung einer solchen Korrelation gegeben (sie stellt eine modifizierte Variante einer der Abbildungen aus Plumb et al. (2000) dar). Die Krümmung der Kurve wird durch die unterschied-

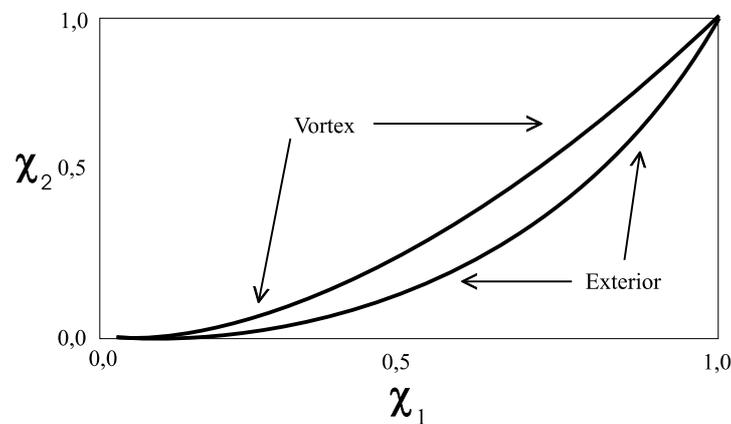


Abbildung 7.1: Schematische Darstellung der Korrelation zweier Spurenstoffe innerhalb des Vortex, beziehungsweise nach einem Mischprozeß über den Vortexrand (*Exterior*). Dabei hat  $\chi_1$  eine größere Lebensdauer als  $\chi_2$ . Das Schema wurde modifiziert aus Plumb et al. (2000) übernommen.

lichen Lebensdauern der Spurenstoffe bestimmt. Hätten beide Spurenstoffe die selbe Lebensdauer würde sich eine Gerade ergeben. In dem gezeigten Beispiel

hat  $\chi_1$  eine größere Lebensdauer als  $\chi_2$ . Das Verhältnisse der beiden Spurenstoffe darf sich auf Grund diabatischer Bewegungen nicht verändern, da beide im gleichen Maße davon beeinflusst werden. Mischprozesse über den Vortexrand hinweg führen jedoch zu einer Verschiebung der Korrelation. Bei den Transportprozessen außerhalb des Vortex können die Spurenstoffe auch ihren chemischen Senken ausgesetzt werden. Aufgrund der geringeren Lebensdauer ist deren Einfluß auf  $\chi_2$  größer als auf  $\chi_1$ . Folglich wird die Krümmung der Kurve erhöht.

Dieser Umstand läßt sich auch auf die ASUR-Messungen anwenden, da mit  $N_2O$  und  $CH_3Cl$  zwei Tracer bei diversen Flügen gemessen wurde. Die Korrelation der beiden Spurenstoffe ist in Abbildung 7.2 wiedergegeben. Hierbei wurden Mittelwerte der jeweiligen Meßflüge miteinander korreliert: Schwarze Diamanten: Dezember 1999, graue Dreiecke: Januar 2000 und hellgraue Quadrate: März 2000. Der Fehler entspricht der Standardabweichung des Mittelwertes. Die Krümmung beruht auf der größeren Lebensdauer von  $N_2O$  in der unteren Stratosphäre gegenüber  $CH_3Cl$  und entspricht der zum Beispiel von Avallone und Prather (1997) beschriebenen Form. Die Messungen weisen

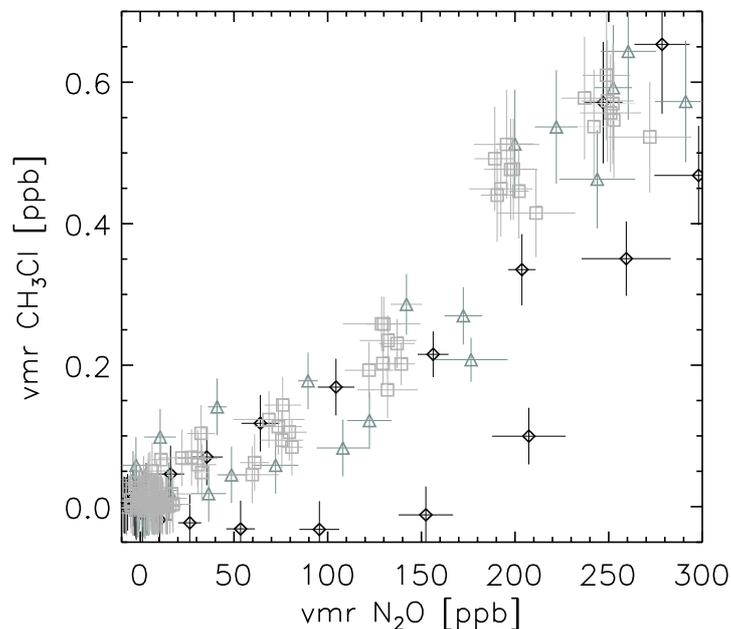


Abbildung 7.2: Korrelation von  $N_2O$  und  $CH_3Cl$  als Mittelwert der jeweiligen Meßflüge. Mit schwarze Diamanten: Dezember 1999, graue Dreiecke: Januar 2000, hell graue Quadrate: März 2000. Der Fehler entspricht der Standardabweichung des Mittelwertes.

eine gewisse Streuung auf, die vor allem durch die große Variation in den  $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Messungen bestimmt wird (vergleiche Abbildung 5.10). Eine Korrelation weicht jedoch wesentlich weiter ab als die anderen. Die zugrunde liegenden Messungen wurde während des zweiten Meßfluges, am 2. Dezember 1999 durchgeführt. Die Abweichung gegenüber den übrigen Messungen erfolgt in die Richtung ,wie sie eine Einmischung von Luft aus mittleren Breiten bewirken würde (vergleiche Abbildung 7.1). Die Schlußfolgerung, daß für diesen Zeitpunkt noch nicht von einem abgeschlossenem polaren Vortex ausgegangen werden kann, ist folglich naheliegend.

Die Korrelation der Messungen vom 5. Dezember 1999 befindet sich im Rahmen der Fehler innerhalb desselben Bereiches wie die Korrelationen für spätere Meßflüge. Ab diesem Zeitpunkt kann man also von einem abgeschlossenen Vortex ausgehen.

Eine genaue Differenzierung, ab wann keine nennenswerte Einmischung mehr von Luft aus mittleren Breiten in den Vortex hinein stattgefunden hat, ist somit aus den ASUR-Messungen alleine nicht möglich. Hierzu wurden vor allem in der ersten Teilkampagne im Dezember 1999 zuwenig Messungen von  $\text{CH}_3\text{Cl}$  durchgeführt.

Die Korrelationen der beiden späteren Teilkampagnen im Januar und März 2000 deuten darauf hin, daß während dieses Zeitraumes in der unteren Stratosphäre keine nennenswerten Mischprozesse über den Vortexrand hinweg stattgefunden haben.

### 7.1.2 RDF-Rechnungen

Eine weitere Methode, die Abgeschlossenheit des Vortex zu bestimmen, ist die Berechnung des Luftaustausches über den Vortexrand hinweg. Hierzu wurden hochaufgelöste Karten verwendet, die mit dem *reverse domain filling* (RDF) Verfahren (Sutton et al. (1994), Sobel et al. (1997)) berechnet wurden.

Das RDF Verfahren basiert auf der Berechnung von Trajektorien für Luftpakete. Die Pakete werden hierzu auf einem festen Gitter gleichzeitig initialisiert. Mit Hilfe von Windfeldern aus meteorologischen Aufzeichnungen werden die Trajektorien auf denen sich die Luftpakete bewegen für eine gewisse Anzahl von Tage (in diesem Fall 10 Tage) zurück verfolgt. Diese Art der Berechnung führt zu der gleichen Grundstruktur des Vortex, wie aus Analysen der poten-

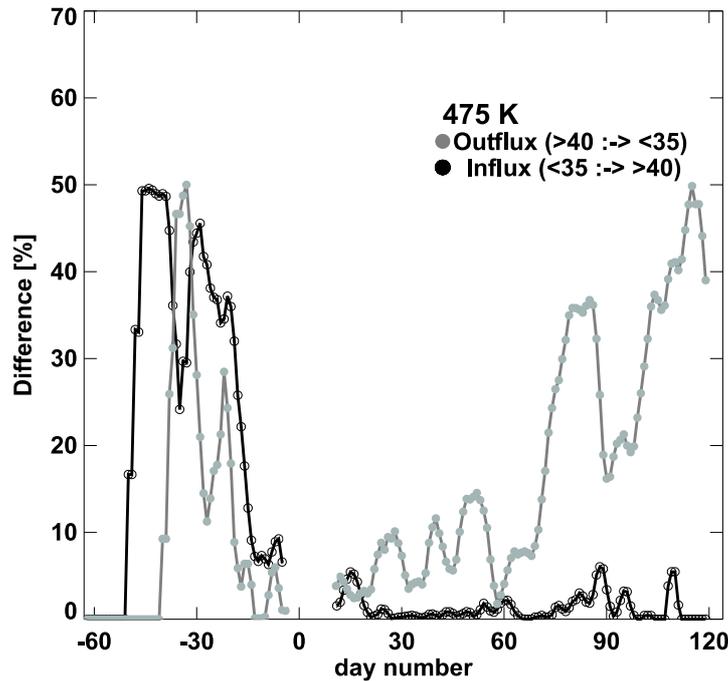


Abbildung 7.3: Darstellung des Flußes von Luftmassen auf der 475 K Isentropen in den Vortex hinein (*influx*), beziehungsweise aus dem Vortex hinaus (*outflux*) für den Winter 1999/2000. Gezeigt ist die zeitliche Entwicklung der prozentualen Änderung der Vortexfläche im Jahr 2000. Das Bild wurde von Eichmann zur Verfügung gestellt. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

tielle Wirbelstärke, jedoch mit einer deutlich höheren Feinstruktur (vergleiche Sinnhuber (1998)).

Für einen abgeschlossenen und ungestörten Vortex erfolgt die Bewegung der Luftmassen auf den Trajektorien ausschließlich innerhalb des Vortexgebietes. Trajektorien über den Rand stellen somit ein Maß für den Austausch von Luft innerhalb und außerhalb des Vortex dar.

Abbildung 7.3 zeigt die Berechnung des Flusses von Luftmassen über den Vortexrand hinweg für den Winter 1999/2000 für die 475 K Isentrope. Dargestellt ist die prozentuale Änderung des Vortex gegenüber dem Tag des Jahres 2000. Die verwendeten Windfelder entstammen UKMO Analysen. Als Vortexrand wurde ein Bereich von 35 bis 40 PVU angenommen. Dies entspricht einem Bereich zwischen 64 und 70° äquivalenter Breite im März 2000. Als Fluß aus dem Vortex hinaus (*outflux*) werden somit Luftmassen bezeichnet, die eine Wirbelstärke kleiner als 35 PVU besitzen, Tage zuvor jedoch noch in Gebieten

waren mit einer Wirbelstärke größer als 40 PVU. Für den Fluß in den Vortex hinein (*influx*) gilt entsprechend das Gegenteil.

Die Berechnungen zeigen, daß Anfang Dezember 1999 noch ein starker Austausch über den Vortexrand hinweg stattgefunden hat. Der Vortex kann für diesen Zeitraum somit nicht als abgeschlossen betrachtet werden. Ab Mitte Dezember (etwa Tag -15) hat der Austausch über den Rand stark abgenommen. In der Folgezeit kann aus den Berechnungen kein Transport mehr in den Vortex hinein abgeleitet werden. Mitte Februar 2000 führte eine kurze Erwärmungsphase zu einer Störung des Vortex. Dies bewirkte bis Tag 90 einen erhöhten Fluß von Luft aus dem Vortex heraus. In diesem Zeitraum nahm die vom Vortex bedeckte Fläche ab (vergleiche Abbildung 5.9). Ab Mitte März 2000 begann der Vortex langsam zusammenzubrechen, dies wird wieder durch einen erhöhten Fluß von Luft aus dem Vortex hinaus gekennzeichnet.

### 7.1.3 Zusammenfassung

Die Tracer-Tracer Korrelation von  $N_2O$  und  $CH_3Cl$  zeigen ebenso wie Berechnungen mit dem RDF-Verfahren, daß die Bildung des Vortex Ende November / Anfang Dezember 1999 noch nicht abgeschlossen war, sondern bis Mitte Dezember andauerte. Für den restlichen Winter zeigen sowohl die Tracer-Tracer Korrelation als auch das RDF-Verfahren, daß bis Mitte März 2000 die Vortexfläche kontinuierlich abnahm, jedoch keine nennenswerten Mischprozesse über den Rand hinweg in den Vortex hinein stattgefunden haben.

Es wurde gezeigt, daß die Korrelation der beiden von ASUR gemessenen Tracer  $N_2O$  und  $CH_3Cl$  geeignet ist, Aussagen über die Abgeschlossenheit des Vortex zu treffen.

## 7.2 Bestimmung des diabatischen Absinkens

Die Untersuchung der Vortexsituation hat gezeigt, daß erst ab Mitte Dezember von einem abgeschlossenen Vortex ausgegangen werden kann. Um diesem Umstand Rechnung zu tragen wurden von der ersten Teilkampagne nur Messungen der letzten drei Meßflüge berücksichtigt. Diese Flüge wurden im Zeit-

raum zwischen dem 12. Dezember und 16. Dezember durchgeführt (vergleiche Tabelle 4.2).

### 7.2.1 Aus ASUR Tracer-Messungen

Wie schon in den vorangegangenen Kapitel dargestellt, können die beiden dynamischen Tracer  $N_2O$  und  $CH_3Cl$  von dem ASUR-Instrument detektiert wer-

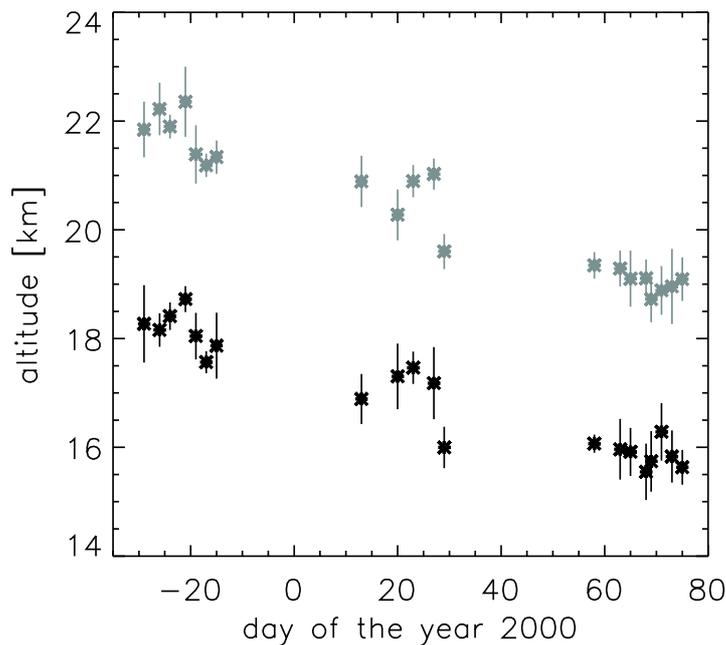


Abbildung 7.4: Entwicklung der 100 (grau) und 200 ppb (schwarz) Schicht von  $N_2O$  innerhalb des polaren Vortex. Gezeigt sind Mittelwerte der Flüge gegenüber der Höhe. Die angegebenen Fehler entsprechen der Summe der Standardabweichung des Mittelwertes und der Unsicherheit für die entsprechende  $N_2O$  Schicht. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

den. Auf Grund der geringen Anzahl der  $CH_3Cl$ -Messungen muß auf deren Berücksichtigung verzichtet werden.

Abbildung 7.4 zeigt die Evolution der  $N_2O$ -Messungen für den Winter 1999/2000. Dargestellt ist die höhenabhängige Entwicklung der 100 ppb (grau) und 200 ppb (schwarz)  $N_2O$  Schicht über dem Tag des Jahres 2000. Die eingezeichneten Werte entsprechen dem Mittelwert eines Meßfluges, die Fehler der Standardabweichung des Mittelwertes. Es ist für beide Schichten eine

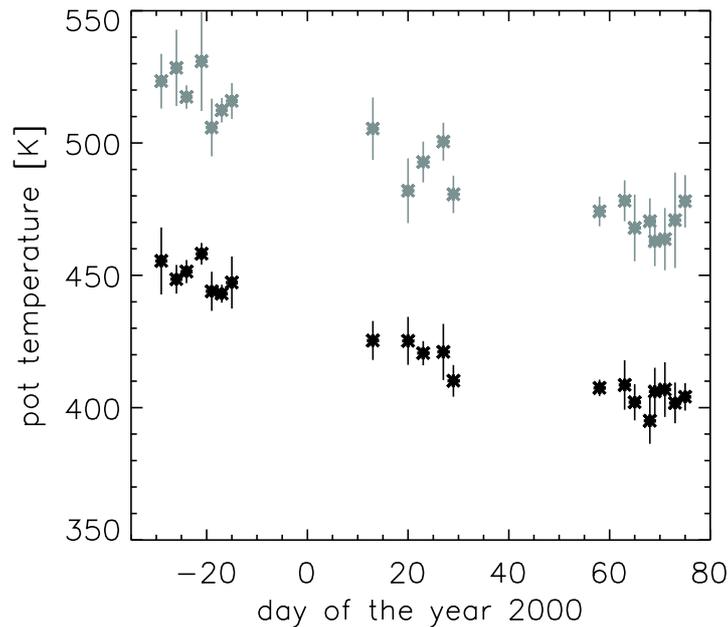


Abbildung 7.5: Entwicklung der 100 (grau) und 200 ppb (schwarz) Schicht von  $N_2O$  innerhalb des polaren Vortex. Gezeigt sind Mittelwerte der Flüge gegenüber der potentiellen Temperatur. Die angegebenen Fehler entsprechen der Summe der Standardabweichung des Mittelwertes und der Unsicherheit für die entsprechende  $N_2O$  Schicht. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

deutliche Abnahme der Höhe zu erkennen. Diese ist rein dynamisch bedingt und wird durch das Absinken der Luftmassen im polaren Vortex, während des Winters verursacht. Die Messungen der letzten drei Meßflüge der ersten Teilkampagne (im Dezember 1999) zeigen niedrigere Mischungsverhältnisse als die Messungen der vorherigen Meßflüge. Dies läßt sich, wie bereits erwähnt, durch das Einmischen von Luft aus mittleren Breiten erklären. Die Variation im Januar 2000 ist auf Variationen innerhalb des Vortex zurückzuführen. Der Vortex verändert seine Lage kontinuierlich. Dabei werden bestimmte Bereiche der Sonnenstrahlung ausgesetzt. Diese heizt die Atmosphäre auf und wirkt so dem Absinken der Luftmassen entgegen. Eine gleichmäßige Mischung innerhalb des Vortex ist somit nicht mehr gegeben. Um diesem Umstand Rechnung zu tragen, wurde für die Berechnung des diabatischen Absinkens der jeweilige Kampagnenmittelwert verwendet. Für die 100 ppb  $N_2O$  Schicht wurde ein Absinken von einer Höhe von 21,3 km, Mitte Dezember 1999 auf 19,0 km, Mitte März 2000 beobachtet. Dies entspricht einem mittleren Absinken von etwa  $27,4 \pm 0,9$  m pro Tag für den genannten Zeitraum. Die 200 ppb Schicht sankt

in dem selben Zeitraum von 17,95 km auf 16,00 km, also um etwa  $23,2 \pm 1,4$  m pro Tag ab.

In vielen Fällen wird die potentielle Temperatur  $\Theta$ , anstatt der geometrischen Höhe, als Höhenskala verwendet. Um eine Vergleichbarkeit mit anderen Instrumenten zu gewährleisten wurde aus den für die Inversion verwendeten Temperatur- und Druckprofilen die mittlere potentielle Temperatur innerhalb des Vortex für jeden Flug errechnet. Abbildung 7.5 zeigt die Entwicklung der beiden  $N_2O$  Schichten (100 ppb, grau und 200 ppb, schwarz) gegenüber der potentiellen Temperatur. Als mittlere Absinkrate wurden für den Zeitraum von Mitte Dezember 1999 bis Mitte März 2000  $0,514 \pm 0,022$  K pro Tag für 100 ppb, beziehungsweise  $0,483 \pm 0,023$  K pro Tag für 200 ppb  $N_2O$  bestimmt.

In Tabellen 7.1 und 7.2 sind die Werte für das Absinken der 100 und 200 ppb Schicht noch einmal zusammengefaßt. Hierbei wurden jeweils die Werte für die Teilkampagnen, sowie für den gesamten Zeitraum der Messungen in Abhängigkeit von der geographischen Höhe (Tabelle 7.1) und der potentiellen Temperatur (Tabelle 7.2) angegeben. Die berücksichtigten Zeiträume betragen jeweils etwa 36 (zwischen Dezember und Januar), 48 (Januar bis März) und 84 Tage (Dezember bis März).

Tabelle 7.1: Übersicht des diabatischen Absinkens, berechnet aus ASUR  $N_2O$ -Messungen in [km]. Jeweils gilt: 1. Zeile: absolutes Absinken im angegebenen Zeitraumes, 2. Zeile: Start- und Endhöhe, 3. Zeile: Absinkrate pro Tag.

|        | Dez-Jan             | Jan-Mär             | Dez-Mär             |
|--------|---------------------|---------------------|---------------------|
| [ ppb] | [ km]               | [ km]               | [ km]               |
|        | $0,69 \pm 0,13$     | $1,61 \pm 0,08$     | $2,30 \pm 0,08$     |
| 100    | (21,31-20,62)       | (20,62-19,01)       | (21,31-19,01)       |
|        | $0,0191 \pm 0,0036$ | $0,0336 \pm 0,0016$ | $0,0274 \pm 0,0009$ |
|        | $0,84 \pm 0,14$     | $1,09 \pm 0,13$     | $1,95 \pm 0,12$     |
| 200    | (17,95-17,09)       | (17,09-16,00)       | (17,95-16,00)       |
|        | $0,0233 \pm 0,0039$ | $0,0227 \pm 0,0027$ | $0,0232 \pm 0,0014$ |

Tabelle 7.2: Übersicht des diabatischen Absinkens, berechnet aus ASUR N<sub>2</sub>O-Messungen in [K]. Jeweils gilt: 1. Zeile: absolutes Absinken im angegebenen Zeitraumes, 2. Zeile: Start- und Endwert, 3. Zeile: Absinkrate pro Tag.

| [ ppb] | Dez-Jan<br>[ K]               | Jan-Mär<br>[ K]               | Dez-Mär<br>[ K]               |
|--------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 100    | 18,63±2,94<br>(512,25-493,62) | 24,50±2,13<br>(493,62-469,12) | 43,13±1,83<br>(512,25-469,12) |
|        | 0,516±0,081                   | 0,512±0,044,                  | 0,514±0,022                   |
| 200    | 22,18±2,32<br>(445,17-422,99) | 18,37±2,04<br>(422,99-404,62) | 40,55±1,93<br>(445,17-404,62) |
|        | 0,614±0,064                   | 0,384±0,043                   | 0,483±0,023                   |

### 7.2.2 Aus ASUR Ozonmessungen

Eine andere Methode, das diabatische Absinken der Luft zu bestimmen, stellt die Berechnung von Heizraten dar. Auf diese Methode wird bei Messungen von Instrumenten zurückgegriffen, wenn keine eigenen oder fremden Tracermessungen zur Verfügung stehen.

In der mittleren Stratosphäre werden diabatische Temperaturänderungen praktisch ausschließlich durch Strahlungsprozesse erzeugt. Wärmeleitung spielt nur eine sehr geringe Rolle (Andrews et al. (1987)). Die Temperaturänderungen ergeben sich aus der Absorption von kurzwelliger solarer Strahlung sowie durch langwelligen Strahlungsaustausch. Die Absorption der kurzwelligen Strahlung wird von Ozon in der Stratosphäre und Wasserdampf in der Troposphäre dominiert. Der langwellige Strahlungsaustausch, der neben Absorption auch die Eigenemission der Atmosphäre beinhaltet, wird im Wesentlichen durch Wasserdampf, Ozon und CO<sub>2</sub> bestimmt. Für eine detaillierte Ausführung zu diesem Thema sei hier auf Sinnhuber (1998) verwiesen. Während der Polarnacht überwiegt im Wesentlichen die Strahlungskühlung. Trotzdem werden auch in dieser Zeit die Temperaturen als Heizraten (statt Kühlungsraten) bezeichnet.

Für die Modellierung der diabatischen Heizraten wurde ein breitbandiges Strahlungstransfermodell von Shine (Shine (1987) und Shine (1991)) verwendet. Hierbei sind neben vertikalen Profilen der bereits oben beschriebenen Spurenstoffe noch Temperatur- und Druckprofile, sowie Albedo und der Sonnenzenitwinkel notwendig. Die in dieser Arbeit gezeigten Berechnungen

der Heizraten wurden mit der für GOME-Messungen verwendeten Version des Modells von Shine (1991) erzeugt. Die Heizraten wurden für jede ASUR-Ozonmessung innerhalb des polaren Vortex errechnet und nachfolgend über jeweils einen Meßflug gemittelt. Temperatur- und Druckprofile wurden UKMO Analysen entnommen. Das Wasserdampfprofil für die Stratosphäre entstammt einer UARS HALOE Klimatologie (Randel et al. (1998)). Für die Troposphäre wurden Profile aus UKMO Temperaturmessungen errechnet, wobei eine rela-

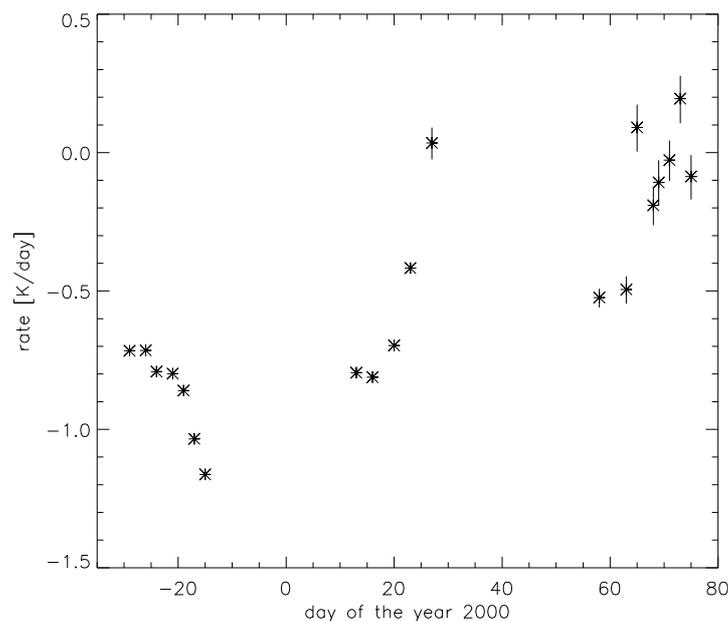


Abbildung 7.6: Heizraten berechnet aus ASUR Ozonmessungen innerhalb des Vortex, dargestellt als Flugmittelwerte für die 475 K Isentrope. Die eingezeichneten Fehler basieren auf die Variation der Ozonmessungen im Rahmen der absoluten Meßfehler von Ozon (siehe Text). Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

tive Feuchte von 60% in der Schicht vom Erdboden bis zu einer Höhe, die einem Druck von 400 hPa entspricht, sowie einem linearen Anstieg um 10% in dem Bereich bis 200 hPa angenommen wurde. Das  $\text{CO}_2$  Mischungsverhältnis wurde auf einen, über die Höhe konstanten Wert von 370 ppm gesetzt. Für die Bodenalbedo wurde ein Wert von 0,9 angenommen, davon ausgehend, daß sich der Vortex hauptsächlich über eisbedeckten Gebieten befand. Der Sonnenzenitwinkel ergibt sich aus der geographischen Position und der Zeit der ASUR Ozonmessung. Vergleiche hierzu auch Eichmann et al. (2001).

Abbildung 7.6 zeigt die Ergebnisse der Heizratenberechnung für eine po-

tentielle Temperaturisentropie von 475 K. Wie bereits erwähnt wurden die Ergebnisse für die einzelnen Ozonmessungen für jeweils einen Meßflug zusammengefaßt. Die eingezeichneten Fehlerbalken, die am deutlichsten in der dritten Teilkampagne hervortreten, ergaben sich aus einer Berechnung, bei der die Ozonwerte in der Größe der absoluten Meßfehler variiert wurden. Zu erkennen ist der geringe Einfluß der Ozonmessung auf die Heizrate in der Periode, wo der polare Vortex nicht oder nur in geringem Maße der Sonnenstrahlung ausgesetzt ist. Der Wert der Fehler ist in dieser Zeit um bis zu einem Faktor 10 kleiner als im März 2000. Die große Variation im Dezember 1999 ist auf die nicht abgeschlossenen Mischprozesse zurückzuführen. Der große Einfluß des Sonnenzenitwinkels ist an den beiden letzten Flügen in der 2. Teilkampagne zu erkennen. Sie wurden im Gegensatz zu den vorherigen Flügen nicht im dunklen Zentrum, sondern hauptsächlich in den sonnenbeschienenen Bereichen des Vortex durchgeführt und waren somit nicht repräsentativ für die Vortexsituation.

Aus den Heizraten läßt sich eine durchschnittliche diabatische Absinkrate von 26,5 m pro Tag für den gesamten Zeitraum von Dezember 1999 bis Mitte März 2000 bestimmen. Dies entspricht einer Absinkrate von 0,398 K pro Tag.

Tabelle 7.3: Übersicht des diabatischen Absinkens, berechnet aus Heizraten von ASUR Ozon-Messungen.

|       | Dez-Jan | Jan-Mär | Dez-Mär |
|-------|---------|---------|---------|
| m/day | 37,5    | 15,5    | 26,5    |
| K/day | 0,563   | 0,233   | 0,398   |

In Tabelle 7.3 sind die Ergebnisse noch einmal für die einzelnen Teilkampagnen zusammengefaßt.

Das durchschnittliche Absinken von Dezember 1999 bis März 2000 stimmt gut mit der aus Tracer-Messungen bestimmten Absinkrate von etwa  $27,4 \pm 0,9$  m pro Tag überein. Hierbei wurde berücksichtigt, daß 100 ppb  $N_2O$  im März 2000 in etwa einer potentiellen Temperatur von 470 K entsprechen. Die Übereinstimmung ist jedoch für die Zeiträume Dezember bis Januar und Januar bis März weniger gut. Diese Diskrepanz wird in dem sich anschließendem Kapitel untersucht.

## 7.3 Vergleich mit Modelldaten und Messungen

Um die Diskrepanzen zwischen den beiden im vorherigen Kapitel vorgestellten Methoden (für die Perioden Dezember bis Januar und Januar bis März) genauer zu untersuchen wurden Vergleiche sowohl mit weiteren Tracer-Messungen als auch mit Heizratenberechnungen mit andere Ozonmessungen durchgeführt. Ein Überblick der Vergleiche wird in den beiden folgenden Unterkapiteln gegeben.

### 7.3.1 N<sub>2</sub>O Messungen

Bereits in Kapitel 6 wurden Vergleiche von ASUR N<sub>2</sub>O-Messungen mit dem vereinheitlichten Datensatz der *ER-2*, sowie mit dem Mark IV-Instrument präsentiert. Die geglätteten Profile zeigten eine sehr gute Übereinstimmung für den gesamten Höhenbereich.

In Abbildung 7.7 sind die N<sub>2</sub>O-Messungen des Mark IV-Instrumentes (auf der linken Seite) und des vereinheitlichten *ER-2* Datensatzes (auf der rechten Seite) dargestellt. Die Mark IV-Messungen beruhen auf zwei Einzelmessungen vom 3. Dezember 1999 (schwarze Linie) und vom 15. März 2000 (graue Linie). Für den vereinheitlichten *ER-2* Datensatz wurden die Einzelmessungen für jeweils eine Teilkampagne der *ER-2* zusammen gefaßt. Die schwarze Linie zeigt hier das Januar Profil, während die graue Linie das März 2000 Profil wiedergibt. Die gestrichelt Linie stellt jeweils das ursprüngliche Profil geglättet mit der Höhenauflösung von ASUR dar. Vor allem bei den Mark IV-Profilen ist das Absinken des Märzprofils gegenüber dem Dezemberprofil gut zu erkennen. Um einen konsistenten Vergleich zu gewährleisten, wurden das Absinken aus den geglätteten Profilen bestimmt.

Es ergab sich für die 100 ppb Schicht für die Mark IV-Messung eine mittlere Absinkrate von  $23,6 \pm 1,2$  m pro Tag, in dem Zeitraum vom 3. Dezember 1999 bis 15. März 2000. Dies ist etwas geringer als die Absinkrate von  $27,4 \pm 0,9$  m pro Tag für die ASUR Messungen.

Die mittlere Absinkrate des vereinheitlichten *ER-2* Datensatzes, der 100 ppb Schicht, wurde mit  $32,6 \pm 1,3$  m pro Tag im Zeitraum von Mitte Januar bis Mitte März 2000 bestimmt. Im selben Zeitraum, betrug die mittlere Absinkrate für

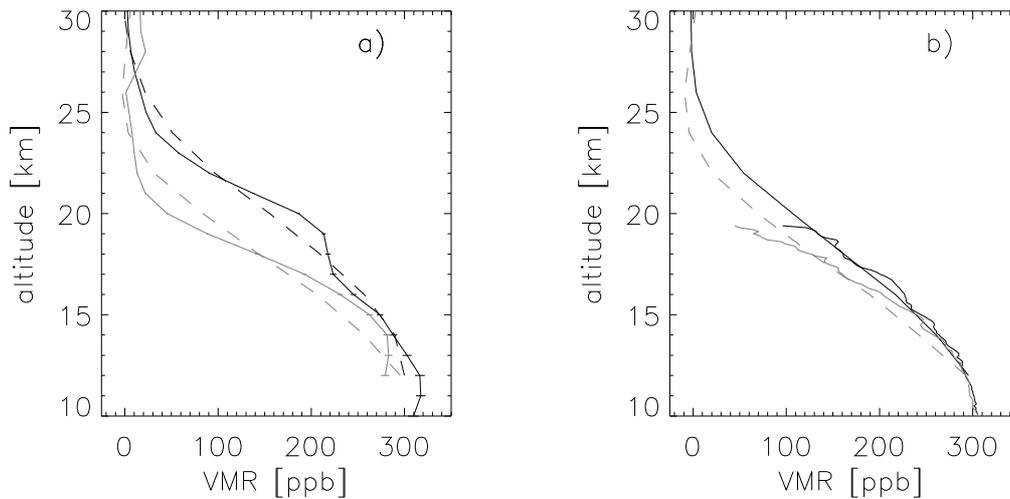


Abbildung 7.7: N<sub>2</sub>O-Messung von Mark IV (linke Seite) und vereinheitlichter ER-2 Datensatz (rechte Seite). Für Mark IV gilt: schwarze Linie: 3. Dezember 1999, graue Linie: 15. März 2000. Für ER-2 gilt: schwarze Linie: Kampagnenmittel im Januar 2000, graue Linie: Kampagnenmittel im März 2000. Die gestrichelte Linie ist jeweils das ursprüngliche Profil geglättet mit der Höhenauflösung von ASUR.

ASUR N<sub>2</sub>O  $33,6 \pm 1,6$  m pro Tag. Die Ergebnisse der mittleren Absinkraten pro Tag stimmen bei diesem Vergleich sehr gut miteinander überein.

Es wurde ein weiterer Vergleich mit modellierten N<sub>2</sub>O-Profilen des SLIMCAT Modells durchgeführt. SLIMCAT ist ein dreidimensionales Chemie-Transport Modell, das von M. Chipperfield entwickelt wurde (Chipperfield (1996)). Die Berechnungen für den Winter 1999/2000 lagen auf 24 Isentropen vor, die einen Höhenbereich von etwa 12 bis 55 km abdecken. Der horizontale Transport wird durch Windfelder berechnet, die aus UKMO-Analysen entnommen werden, ebenso wie Druck und Temperatur für die Isentropen. Das Absinken der N<sub>2</sub>O Profile wird über die Berechnung der diabatischen Temperaturänderungen ermittelt. Eine ausführlichere Beschreibung des Modells ist zum Beispiel in Chipperfield (1996) gegeben.

Der Vergleich ist in Abbildung 7.8 dargestellt. Hierbei stellen die durchgezogenen Linien SLIMCAT und die Sterne ASUR Ergebnisse dar. Die Werte in grau geben die 100 ppb, die Werte in schwarz die 200 ppb Schicht von N<sub>2</sub>O wieder. Anzumerken ist noch, daß die SLIMCAT Daten, aus Gründen der Vergleichbarkeit, mit der Höhenauflösung von ASUR geglättet wurden. Die Darstellung zeigt, daß SLIMCAT die entsprechenden Mischungsverhältnisse in niedrigeren Höhen zeigt, mit Ausnahme der 100 ppb Schicht im März 2000. Weiter ist eine

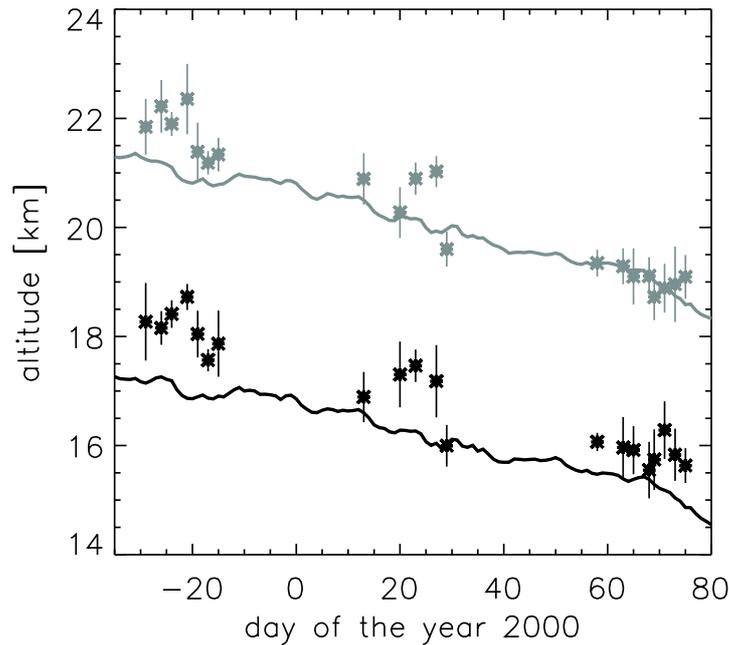


Abbildung 7.8: Entwicklung der N<sub>2</sub>O Mischungsverhältnisse als Funktion von Höhe und Tag des Jahres 2000, berechnet von SLIMCAT. Es gilt: graue Linie: 100 ppb, schwarze Linie: 200 ppb N<sub>2</sub>O. Die eingezeichneten Sterne stellen die ASUR N<sub>2</sub>O Messungen dar. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

etwas geringere Steigung in der zweiten Winterhälfte in den SLIMCAT Daten zu erkennen, sowie niedrigere „Startwerte“ im Dezember 1999. Dies spiegelt sich auch in den mittleren Absinkraten wieder. Für die Periode von Mitte Dezember 1999 bis Anfang März 2000 ergibt sich für die 100 ppb Schicht ein Wert von 21,7 m pro Tag (ASUR:  $27,4 \pm 0,9$  m pro Tag).

In Tabelle 7.4 sind die Ergebnisse der Absinkraten der drei Instrumente und des Modells, für die 100 ppb Schicht zusammengefaßt. In der Periode von Mitte Dezember 1999 bis Mitte Januar 2000 zeigen ASUR und SLIMCAT eine sehr gute Übereinstimmung. In der zweiten Winterhälfte (zwischen Mitte Januar und Anfang März 2000) ist die für SLIMCAT bestimmte Absinkrate weitaus geringer als von ASUR und *ER-2*. Die Werte über den gesamten Zeitraum zeigen eine breitere Streuung, mit den niedrigsten Werten für SLIMCAT und den höchsten für ASUR.

Nach einer persönlichen Mitteilung von Sinnhuber (2001) wird das Absinken der Luftmassen im SLIMCAT Modell im Winter 1999/2000 unterschätzt.

Diese Aussage wird auch durch die sehr gute Übereinstimmung der höheren Werte von ASUR und *ER-2* in der zweiten Winterhälfte bestätigt.

Eine Untersuchung von Greenblatt et al. (2001), in der sowohl ASUR, als auch Mark IV  $N_2O$ -Daten verwendet wurden, unterstützen außerdem die Annahme, dass sowohl Mark IV als auch ASUR ebenfalls das Absinken unterschätzen. Greenblatt et al. (2001) ermittelten in ihrer Arbeit, für den Zeitraum von Ende November 1999 bis Anfang März 2000, ein Absinken der Luftmassen im Vortex um  $65 \pm 12$  K in der unteren Stratosphäre. Aus den ASUR-Messungen ergibt sich ein Wert von etwa  $42 \pm 3$  K (vergleiche Tabelle 7.2). Werden jedoch alle  $N_2O$ -Messungen von ASUR im Dezember 1999 berücksichtigt, so erhöht sich der Wert auf etwa  $47 \pm 3$  K. Die bestehende Diskrepanz ist durch die starke Glättung der ASUR-Profile oberhalb von 100 ppb gegeben, die zu einer Unterschätzung des Absinkens oberhalb von 100 ppb führen.

Tabelle 7.4: Übersicht des diabatischen Absinkens pro Tag (in m/Tag), berechnet aus geglätteten  $N_2O$  Profilen von SLIMCAT, Mark IV und dem vereinheitlichten *ER-2* Datensatz. Die Werte wurden für die 100 ppb Schicht berechnet.

|         | Dez-Jan        | Jan-Mär        | Dez-Mär        |
|---------|----------------|----------------|----------------|
| ASUR    | $19,1 \pm 3,6$ | $33,6 \pm 1,6$ | $27,4 \pm 0,9$ |
| SLIMCAT | 20,2           | 23,2           | 21,7           |
| ER-2    |                | $32,6 \pm 1,3$ |                |
| Mark IV |                |                | $23,6 \pm 1,2$ |

### 7.3.2 Heizraten

Wie bereits erwähnt werden die Heizratenberechnungen für die Unterscheidung von diabatischen und chemischen Prozessen genutzt. Neben dem SLIMCAT-Modell wird dieses Verfahren sowohl bei RAM (vergleiche Klein et al. (2001)), als auch GOME Ozonverlustmessungen verwendet. Abbildung 7.9 zeigt den Vergleich der berechneten Heizraten für die 475 K Isentrope der beiden Instrumente und des Modells mit ASUR. Die für ASUR verwendeten Daten entsprechen denen aus Kapitel 7.2.2. Für die Berechnung der Heizraten von ASUR, GOME und RAM wurde das gleiche Strahlungstransfermodell

von Shine (1987) verwendet. Ebenso wurden die benötigten Eingabeparameter für CO<sub>2</sub>, Wasserdampf und Albedo gleich gewählt. Die Ozondaten entstammen den Messungen des jeweiligen Instrumentes. Bei Temperatur und Druck griffen bei der Berechnung ASUR und GOME auf UKMO-Analysen zurück, während RAM ECMWF-Analysen verwendete.

Im Dezember 1999 zeigen sowohl ASUR, als auch RAM niedrigere Heizraten als das SLIMCAT Modell. Hierbei soll noch einmal darauf hingewiesen werden, daß die Abgeschlossenheit des Vortex für Anfang Dezember nicht gewährleistet war (vergleiche Kapitel 7.1). Aus diesem Grund wurden die Daten von Tag -20 und früher nicht berücksichtigt. Im Januar 2000 stimmen ASUR und RAM für die ersten drei gezeigten Meßflüge der DC-8 gut überein. SLIMCAT errechnet wiederum höhere Heizraten. Die beiden späteren Datenpunkte von ASUR zeigen weit größere Heizraten als RAM. Während zu dieser Zeit des Jahres, die solare Strahlung Ny-Ålesund noch nicht erreicht, wurden die beiden Flüge der DC-8 in die von der Sonne beschienenen Bereich des Vortex durchgeführt. Der höhere Sonnenzenitwinkel für die ASUR-Messungen spiegelt sich in den höheren Heizraten wieder. In der dritten Periode, Anfang März 2000 zeigen die SLIMCAT-Daten im Mittel geringere Werte als für die anderen drei Instrumente.

Zusammenfassend läßt sich bemerken, daß die Berechnung der Heizraten für die gemessenen Ozondaten in sich einigermaßen konsistente Ergebnisse zeigt. Die SLIMCAT Berechnung hingegen zeigen eine größere Abweichung, die in der ersten Winterhälfte ausgeprägter als in der zweiten ist.

Die aus der Heizraten Berechnung ermittelten Absinkraten pro Tag sind in Tabelle 7.5 zusammengefaßt. Die Absinkraten von ASUR und RAM sind für den Zeitraum von Mitte Dezember 1999 bis Mitte Januar 2000 in guter Übereinstimmung, wohingegen die SLIMCAT Berechnungen einen weit geringeren Wert ergeben. Für die zweite Winterhälfte (Mitte Januar bis Anfang März 2000) zeigt ASUR die geringsten Werte der ansonsten ähnlichen Ergebnisse. Über den gesamten Zeitraum hinweg betrachtet zeigen die Werte eine breite Streuung von 23,2 bis 29,8 m pro Tag, mit dem niedrigsten Wert für SLIMCAT und dem höchsten für RAM.

Um eine vernünftige Aussage über das Absinken im Vortex zu treffen, muß davon ausgegangen werden, das die Messungen ein repräsentatives Mittel der Vortexsituation wiedergeben. Dies ist nur bei der Berechnung des SLIMCAT Modells wirklich für den gesamten Winter gegeben. Der Vergleich mit GOME

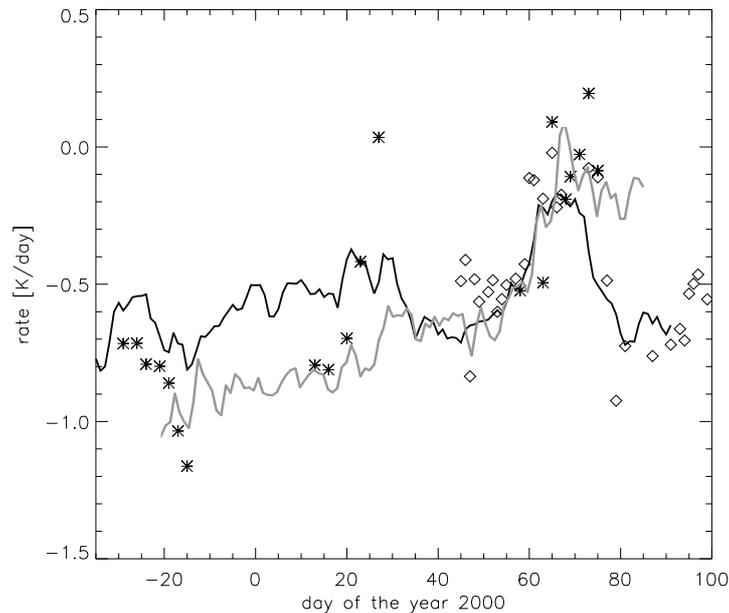


Abbildung 7.9: Heizraten berechnet aus Ozonmessungen innerhalb des Vortex, dargestellt für die 475 K Isentrope. Für die Ozondaten gilt: Sterne: ASUR, Diamanten: GOME, graue Linie: RAM und schwarze Linie: SLIMCAT. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

und RAM zeigt jedoch, daß deren Messungen für die zweite Winterhälfte vergleichsweise repräsentativ für den Vortex waren. Die niedrigeren Werte von ASUR zeigen, daß dies für die ASUR-Messungen nicht zutreffend ist. Ob die für die erste Winterhälfte übereinstimmenden Ergebnisse von ASUR und RAM das Absinken überschätzen, oder SLIMCAT es unterschätzt kann aus den Heizraten alleine nicht bestimmt werden. Es kann ebensowenig eine schlüssige Erklärung für die Diskrepanz zwischen SLIMCAT und ASUR, beziehungsweise RAM gegeben werden. Auch möglicherweise nicht repräsentative Ozonmessungen reichen für eine Klärung nicht aus, da der Einfluß von Ozon auf die Heizrate während der Dunkelheit recht gering ausfällt (vergleiche hierzu Kapitel 7.2.2). Der Unterschied ist somit in den weiteren Eingabeparametern  $\text{CO}_2$ , Wasserdampf und Albedo zu suchen.

Tabelle 7.5: Übersicht des diabatischen Absinkens pro Tag (in m/Tag), ermittelt aus der Berechnung der Heizraten von ASUR, GOME, RAM und SLIMCAT. Die Werte wurden für die 475 K Isentrope berechnet.

|         | Dez-Jan | Jan-Mär | Dez-Mär |
|---------|---------|---------|---------|
| ASUR    | 37,5    | 15,5    | 26,5    |
| SLIMCAT | 25,5    | 20,8    | 23,2    |
| RAM     | 39,0    | 20,5    | 29,8    |
| GOME    |         | 18,5    |         |

## 7.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Bestimmung von diabatischem Absinken sowohl aus Tracer-Messungen als auch aus der Berechnung von Heizraten dargestellt. Es wurden außerdem Vergleiche von Absinkraten von anderen Instrumenten präsentiert.

Die Absinkraten, die aus den  $N_2O$ -Messungen bestimmt wurden, stimmen für die Instrumente recht gut überein. Dies trifft ebenso für die Bestimmung der Absinkraten aus den Heizraten von Ozonmessungen zu. Die SLIMCAT-Ergebnisse zeigen jedoch jeweils in einer der beiden Winterhälften die größten Abweichungen. Die Unterschiede bei SLIMCAT zwischen den Absinkraten berechnet aus  $N_2O$ -Profilen und Heizraten, basiert auf der Glättung der  $N_2O$ -Profile mit der Höhenauflösung von ASUR.

Bezeichnend ist auch, daß das aus Heizraten bestimmte Absinken in der ersten Winterhälfte höher und in der zweiten niedriger ausfällt als das aus  $N_2O$ -Profilen bestimmte. Die mittleren, über den gesamten Winter berechneten Absinkraten von ASUR stimmen jedoch sehr gut miteinander überein.

Die Heizratenberechnung von ASUR und RAM führt somit zu einer Überschätzung des diabatischen Absinkens in der Periode von Mitte Dezember 1999 bis Anfang Januar 2000. Für die zweite Periode von Mitte Januar bis Anfang März 2000 kommt es zu einer Unterschätzung des Absinkens.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß für eine zuverlässige Heizratenberechnung repräsentative Ozonmessungen für den Vortex notwendig sind. Desweiteren stellt vor allem die Bestimmung von Wasserdampf ein Problem dar, da hochaufgelöste Messungen für den gesamten Vortex nicht vorliegen. Auch die Bodenalbedo ist eine Fehlerquelle, da die hier gemachte Annahme von ei-

ner überwiegenden Eisbedeckung des Bodens nicht unbedingt gegeben sein muß. Auch wird das mögliche Vorhandensein von Wolken ignoriert.

## **8 Ozonverlust im THESEO 2000/SOLVE Winter 1999/2000**

In diesem Kapitel wird ein Überblick über verschiedene Methoden zur Bestimmung des chemischen Ozonverlustes gegeben. Hierzu ist es notwendig, daß dynamische und chemische Vorgänge voneinander getrennt werden.

Im ersten Unterkapitel wird die Chloraktivierung im Winter 1999/2000 beschrieben. Das sich anschließende Unterkapitel beschäftigt sich mit der Ozonänderungen ohne dynamische Korrektur, um eine Abschätzung des Einflusses der Dynamik zu ermöglichen. Die nachfolgenden Unterkapitel beschäftigen sich mit der Anwendung der dynamischen Korrektur. Hierbei werden verschiedene Verfahren zur vorgestellt.

In der Zusammenfassung erfolgt eine Gegenüberstellung der mit Hilfe der einzelnen Methoden ermittelten Ozonverluste, sowie eine Abschätzung des chemischen Ozonverlustes für diesen Winter.

Die Daten und Ergebnisse in Kapitel 8.1, Kapitel 8.2 und Kapitel 8.3.3 wurden teilweise aus Bremer et al. (2000) und Bremer et al. (2001) übernommen.

### **8.1 Chloraktivierung**

Wie schon in Kapitel 1.3 näher erläutert wurde, trägt Chlor entscheidend zum stratosphärischen Ozonabbau bei.  $\text{Cl}_2$  wird im Wirbel durch heterogene Reaktionen auf PSCs aus seinen Reservoirgasen  $\text{HCl}$  und  $\text{ClONO}_2$  freigesetzt. Sowie Sonnenlicht zur Verfügung steht, werden die  $\text{Cl}_2$  Moleküle photolysiert und der katalytische Ozonabbau beginnt. Eines der Zwischenprodukte dieser Reaktionen ist der von ASUR gemessene Spurenstoff  $\text{ClO}$  (vergleiche zum Beispiel Gleichungen (1.26)–(1.29). Erst wenn die Temperaturen den Schwellenwert für die PSC Existenz überschreiten, wird das Chlor aus seiner aktiven Form langsam wieder in die Reservoirgase zurück überführt.

Während der THESEO 2000/SOLVE Kampagne wurden von dem ASUR-Instrument kontinuierlich Messungen des Reservoirgases HCl durchgeführt. Die Flugmittelwerte der HCl sowie der ClO Messungen, innerhalb des polaren Vortex, also mit einer äquivalenten Breite größer  $70^\circ$  sind in Abbildung 8.1 dargestellt. Die Mittelwerte wurden mit den  $N_2O$  Messungen korreliert um dynamische Effekte ausschließen zu können. Hierbei entsprechen die grauen Sterne: HCl und die schwarzen Dreiecke: ClO jeweils auf der 100 ppb Schicht von  $N_2O$ . Auf Grund des starken Tagesganges von ClO wurden nur Messungen berücksichtigt, die einen Sonnenzenitwinkel von kleiner als  $86^\circ$  aufweisen.

Im Dezember 1999 wurden keine Messungen von ClO durchgeführt, welche

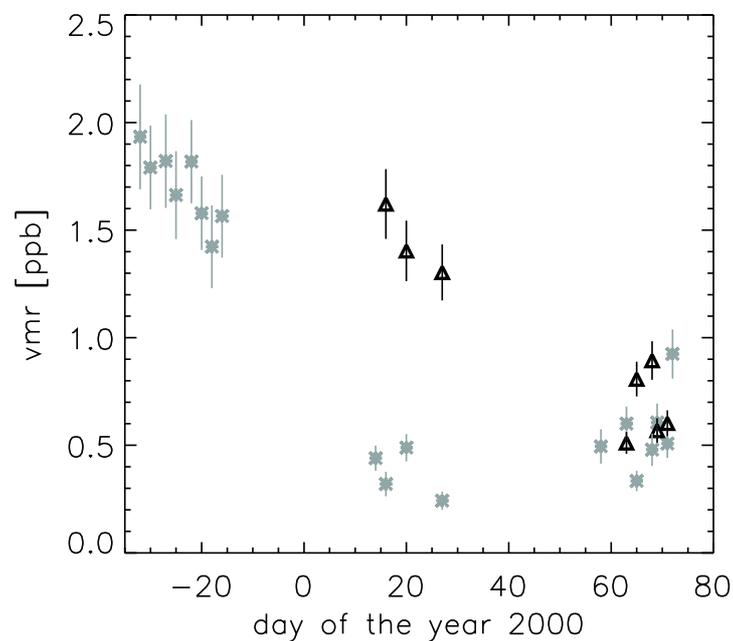


Abbildung 8.1: Flugmittelwerte von HCl (graue Sterne) und ClO (schwarze Dreiecke) innerhalb des Vortex, für die 100 ppb  $N_2O$  Schicht. Es wurden nur ClO Messungen berücksichtigt, bei denen der Spurenstoff einem Sonnenzenitwinkel von kleiner als  $86^\circ$  ausgesetzt war. Die Fehlerbalken entsprechen der Summe aus Standardabweichung des Mittelwertes und der Unsicherheit für das  $N_2O$ . Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

die oben genannten Kriterien erfüllen. Die HCl-Messungen zeigten in dieser Teilkampagne eine leichte Abnahme mit fortschreitender Zeit, die sich nicht alleine durch dynamische Effekte erklären läßt (von König (2001)). Der abnehmende Sonnenzenitwinkel im Januar 2000 hingegen führte zu einer ho-

hen Chloraktivierung. Dabei wurden Höchstwerte im Volumenmischungsverhältnis von bis zu 1,8 ppb in den Einzelmessungen beobachtet. Erwartungsgemäß antikorreliert ergaben für denselben Zeitraum die HCl-Messungen nur geringe Volumenmischungsverhältnisse. Während zu Beginn der Teilkampagne im März 2000 noch mittlere ClO-Mischungsverhältnisse von 0,9 ppb beobachtet wurden, nahmen diese bis Mitte März rasch ab. Das Reservoirdgas HCl zeigte jedoch keine signifikanten Anzeichen einer Rückbildung, die mit einem Anstieg der Mischungsverhältnisse verbunden ist. von König (2001) hat gezeigt, daß die beobachtete Deaktivierung von Chlor stattdessen durch die Bildung des Reservoirdgases ClONO<sub>2</sub> bewirkt wurde.

Für eine ausführliche Beschreibung der ASUR ClO-Messungen, sowie der Chloraktivierung und Deaktivierung im Winter 1999/2000 sei hier auf von König (2001) verwiesen.

## 8.2 Ozonverlust ohne dynamische Korrektur

Die von Januar bis März 2000 anhaltende Chloraktivierung legt die Vermutung nahe, daß es in diesem Winter zu einem massiven Ozonabbau in der unteren Stratosphäre gekommen ist. Was ergaben also die Ozonmessungen?

Abbildung 8.2 gibt einen Überblick aller Ozonmessungen, die von ASUR innerhalb des polaren Vortex, also mit einer äquivalenten Breite größer als 70° durchgeführt wurden. Die vertikalen Profile sind in Abhängigkeit von der äquivalenten Breite dargestellt, aufgeteilt nach den drei Teilkampagnen des THESEO 2000/SOLVE Projektes. Um eine bessere Übersicht zu gewähren wurden die Einzelmessungen für jeweilige Bereiche von 0,5° äquivalenter Breite zusammengefaßt. Die Kreuze am oberen Rand entsprechen der Position der zugrundeliegenden Einzelmessung.

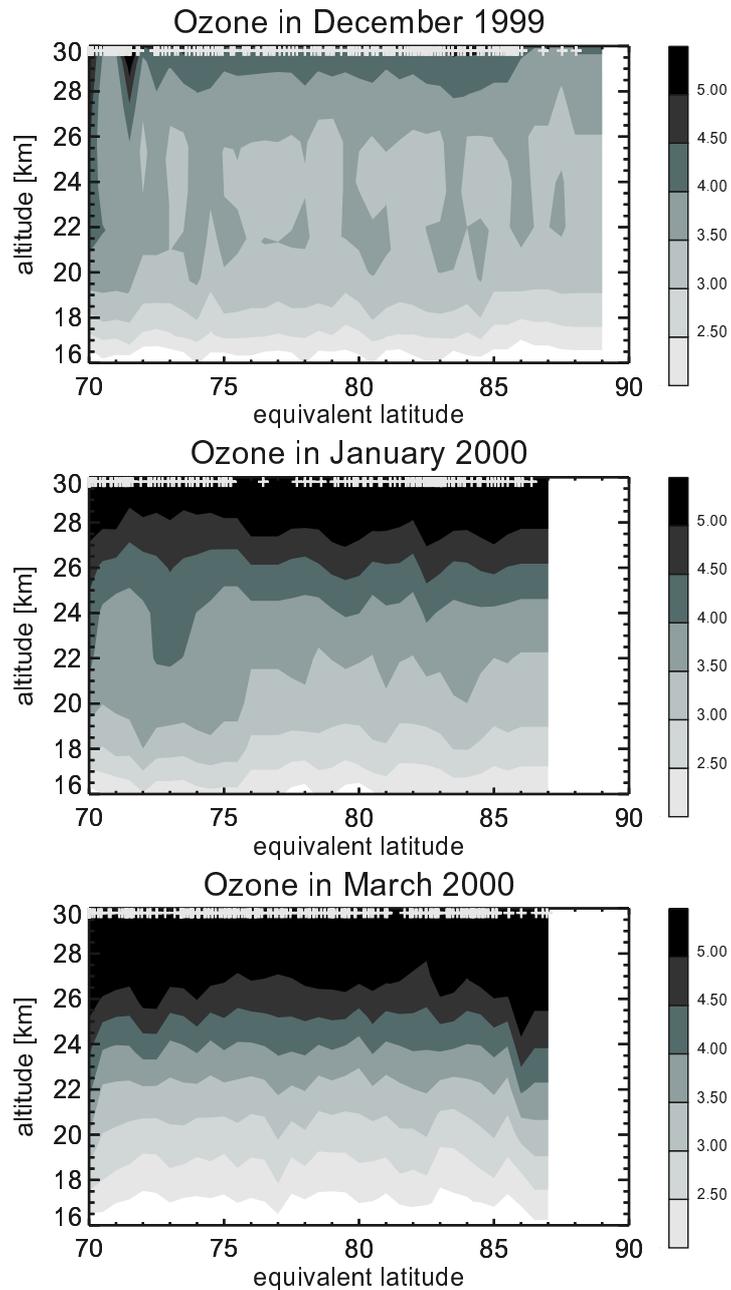


Abbildung 8.2: Entwicklung der Ozonmischungsverhältnisse in [ppm] innerhalb des polaren Vortex. Oben: 30. November 1999 bis 16. Dezember 1999, Mitte: 14. Januar 2000 bis 21. Januar 2000 und unten: 27. Februar 2000 bis 15. März 2000. Die Messungen wurden jeweils über ein Intervall von  $0,5^\circ$  äquivalenter Breite zusammengefaßt.

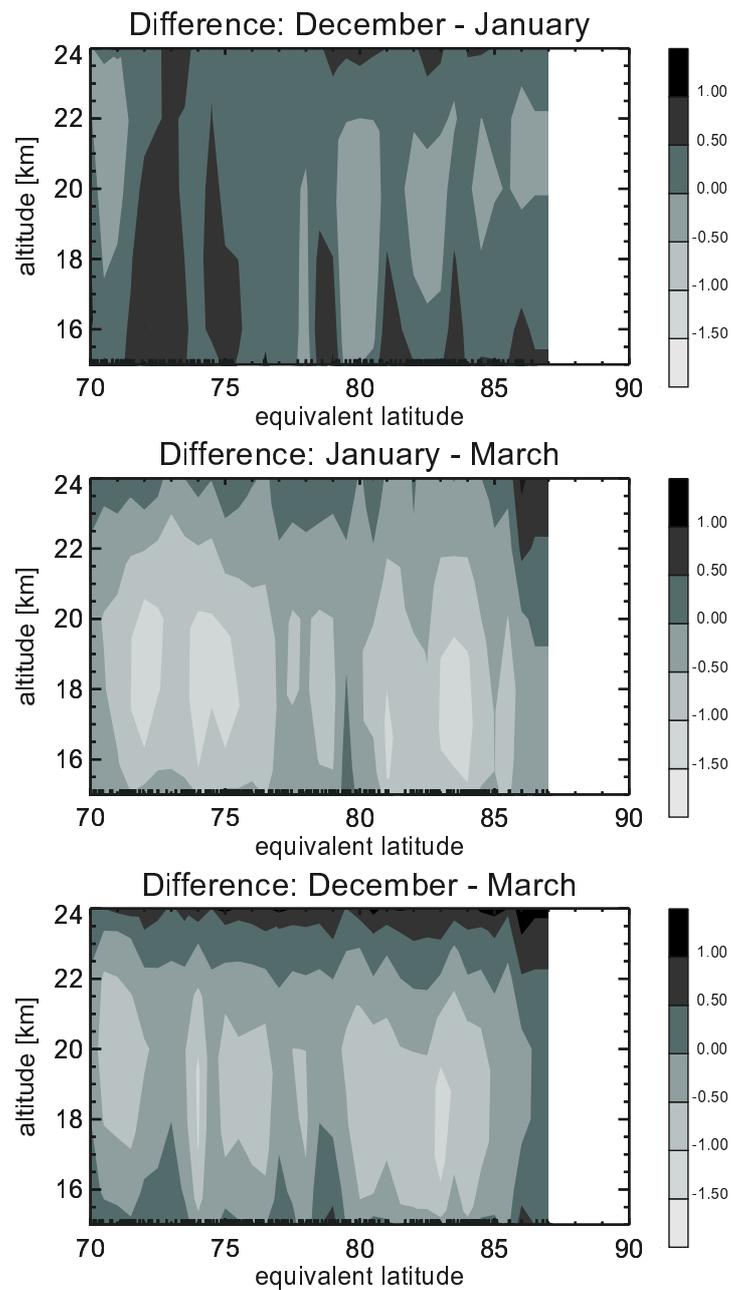


Abbildung 8.3: Differenz der Mischungsverhältnisse von Ozon in [ppm] zwischen den einzelnen Teilkampagnen. Die Werte wurden innerhalb eines Intervalls von  $0,5^\circ$  äquivalenter Breite zusammengefaßt.

Die Ozonmessungen zeigen im Höhenbereich zwischen 24 und 30 km einen mittleren Anstieg von bis zu  $2,25 \pm 0,1$  ppm im Volumenmischungsverhältnis von Dezember 1999 bis Januar 2000. Von Januar bis März 2000 wurde ebenfalls ein Anstieg beobachtet, der jedoch mit bis zu  $0,5 \pm 0,1$  ppm im Mittel vergleichsweise gering ausfiel. Der Anstieg in diesem Höhenbereich ist auf meridionalen Transport von ozonreicher Luft aus den tropischen Quellregionen zurückzuführen. Die Luft wurde in größerer Höhe in den polaren Wirbel hineintransportiert und sank im Laufe des Winters ab.

In dem Höhenbereich von 18 bis 24 km zeigen die Ozonmischungsverhältnisse eine Variation von  $-0,5$  bis  $+0,5$  ppm für den Zeitraum von Dezember 1999 bis Januar 2000. Im Mittel bleiben sie jedoch nahezu konstant. Dies wird auch durch Abbildung 8.3 (oben) verdeutlicht. In ihr sind die Differenzen der Mischungsverhältnisse zwischen den einzelnen Teilkampagnen dargestellt. Die Messungen wurden ebenfalls innerhalb eines Intervalls von  $0,5^\circ$  äquivalenter Breite zusammengefaßt. Abbildung 8.3 (Mitte) zeigt für die Periode von Januar bis März 2000 eine mittlere Abnahme des Ozons um  $0,6 \pm 0,1$  ppm. Diese Abnahme ist durch chemische Ozonzerstörung zu erklären. Im selben Zeitraum wurden, in guter Übereinstimmung hohe Mischungsverhältnisse von ClO beobachtet (vergleiche Abbildung 8.1), einem Zwischenprodukt des katalytischen Ozonabbaus.

Unterhalb einer Höhe von 18 km wurde zwischen Dezember 1999 und Januar 2000 eine durch das Absinken der Luftmassen bedingte mittlere Zunahme von  $0,25 \pm 0,1$  ppm Ozon beobachtet. Wohingegen zwischen der zweiten und dritten Teilkampagne eine durch chemische Zerstörung bedingte mittlere Abnahme in der Mischungsverhältnissen von  $0,6 \pm 0,1$  ppm beobachtet werden konnte.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß oberhalb einer Höhe von 24 km die Zunahme der Ozonmischungsverhältnisse für die gesamte Meßperiode überwog. Unterhalb von 24 km wurde im Mittel eine geringe Abnahme von  $0,6 \pm 0,1$  ppm (vergleiche Abbildung 8.3 (unten)) beobachtet. Diese Abnahme ist gleichbedeutend mit einem mittleren Ozonverlust von etwa 20%. Vergewärtigt man sich das Profil von Ozon (vergleiche Abbildung 5.5), so ist ersichtlich, daß das Absinken der Luftmassen im Vortex zu einer Zunahme der Volumenmischungsverhältnisse von Ozon in geringeren Höhen führen muß. Eine durch chemische Zerstörung erzeugte Abnahme der Mischungsverhältnisse wird somit zu einem gewissen Teil durch das Absinken kompensiert. Die

beobachtete Abnahme ist daher als untere Abschätzung für den Ozonverlust zu verstehen.

Diese Methode wird in der Regel nicht für die Bestimmung des chemischen Ozonverlustes verwendet, da nicht zwischen den dynamisch- und chemischbedingten Ozonänderungen differenziert werden kann.

## 8.3 Ozonverlust mit dynamischer Korrektur

Wie der vorherige Abschnitt gezeigt hat, muß für die Bestimmung des chemischen Ozonverlustes die Auswirkungen von Dynamik und Chemie voneinander getrennt werden. Die nun folgenden Unterkapitel zeigen verschiedene Ansätze für eine dynamische Korrektur und den so bestimmten chemischen Ozonverlust. Hierbei werden neben ASUR-Messungen, die Ergebnisse weiterer Instrumente (GOME und RAM) und des SLIMCAT-Modells herangezogen. Dies soll gewährleisten, daß die in Kapitel 7 gezeigten Diskrepanzen in der Bestimmung des diabatischen Absinkens (für die Perioden Dezember bis Januar und Januar bis März) berücksichtigt werden.

### 8.3.1 Isentropen als Höhenskala

Eine naheliegende Methode der dynamischen Korrektur bildet die potentielle Temperatur. In der Stratosphäre finden die Bewegungen von Luftpaketen für Zeiträume von weniger als 10 Tagen fast ausschließlich auf Isentropen statt (Sparling (1997)). Die potentielle Temperatur kann somit für diese Zeiträume als Erhaltungsgröße angenommen werden. Zu ihrer Berechnung wird neben dem Druck am Erdboden, der Druck und die Temperatur der gesuchten Höhenschicht benötigt (vergleiche Gleichung (1.3)). Diese Informationen können leicht für jeden beliebigen Punkt der Erde aus meteorologische Analysen, die zum Beispiel von ECMWF, UKMO oder auch NCEP erstellt werden, gewonnen werden.

Langfristig betrachtet kommt es jedoch auch zu Transporten senkrecht zu den Isentropen, wodurch es wiederum zu einer dynamisch bedingten Änderung der Mischungsverhältnisse kommen kann. Diese Methode stellt somit nur

eine sinnvolle Anwendung auf kurzen Zeitskalen dar. Trotzdem soll hier eine Abschätzung des Ozonverlustes gegeben werden, bei der die Korrelation mit der potentiellen Temperatur als quasi dynamische Korrektur verwendet wird.

Da in diesem Unterkapitel neben ASUR-Daten auch Daten des *Global Ozone Monitoring Experiment* (GOME) verwendet werden, ist nachfolgend eine kurze Beschreibung des Instrumentes gegeben.

Das GOME-Instrument befindet sich an Bord des ERS-2 Satelliten, der im April 1995 gestartet wurde (Burrows et al. (1999)). Der sonnensynchrone Orbit von ERS-2 ermöglicht GOME eine Abdeckung des gesamten äquatorialen Bereiches innerhalb von drei Tagen. Für die höheren Breiten verringert sich die benötigte Zeit entsprechend. GOME mißt die von der Erde zurückgestreute Strahlung in Nadir-Geometrie im UV und sichtbaren Spektralbereich. Die Ozonprofile werden durch Inversion der Spektren erzeugt. Hierzu wird ein Algorithmus genutzt, der vergleichbar ist mit dem für das NASA *Solar Backscatter UV* Instrument verwendeten (Bhartia et al. (1996)) und speziell für GOME angepaßt wurde (de Beek et al. (1997); Hoogen et al. (1999)).

In Abbildung 8.4 ist die Entwicklung der Tagesmittelwerte von Ozonmessungen innerhalb des polaren Vortex für ASUR (Sterne) und GOME (Dreiecke) auf der 475 K (grau) und 550 K (schwarz) Isentrope dargestellt. Beide Instrumente besitzen eine ähnliche Höhengauflösung, wodurch die Ergebnisse direkt vergleichbar sind. Es sei hier noch angemerkt, daß GOME erst ab Tag 45 im Winter 1999/2000 eine ausreichende Abdeckung des Vortex erreichte (Weber et al. (2000)). In der Zeit zuvor waren auf Grund der hohen Sonnenzenitwinkel innerhalb des Vortex die GOME-Messungen im Wesentlichen auf den Randbereich beschränkt. Die ASUR-Messungen zeigen im direkten Vergleich im Mittel etwas mehr als 10% (5%) höhere Werte auf der 475 K (550 K) Isentrope. ASUR scheint die Mischungsverhältnisse zu überschätzen, was sich auch schon bei Vergleichen mit anderen Instrumenten gezeigt hat (siehe auch Kapitel 6.2.1). Die Meßreihen der beiden Instrumente zeigen jedoch einen vergleichbaren Trend. Aus Abbildung 8.4 ist ersichtlich, daß der Ozonabbau auch nach dem 15. März 2000 (Tag 75), dem letztem Meßtag des ASUR-Instrumentes, noch weiter anhielt. Erst Ende März wurde kein weiterer Ozonverlust mehr beobachtet.

In der Periode von Tag 45 bis Tag 75 ergeben die GOME-Messungen eine Abnahme von  $0,6 \pm 0,1$  ppm Ozon für die 475 K und  $0,7 \pm 0,1$  ppm für die 550 K Isentrope. Für den gesamten Meßzeitraum (von Tag 45 bis Tag 90) ergibt sich

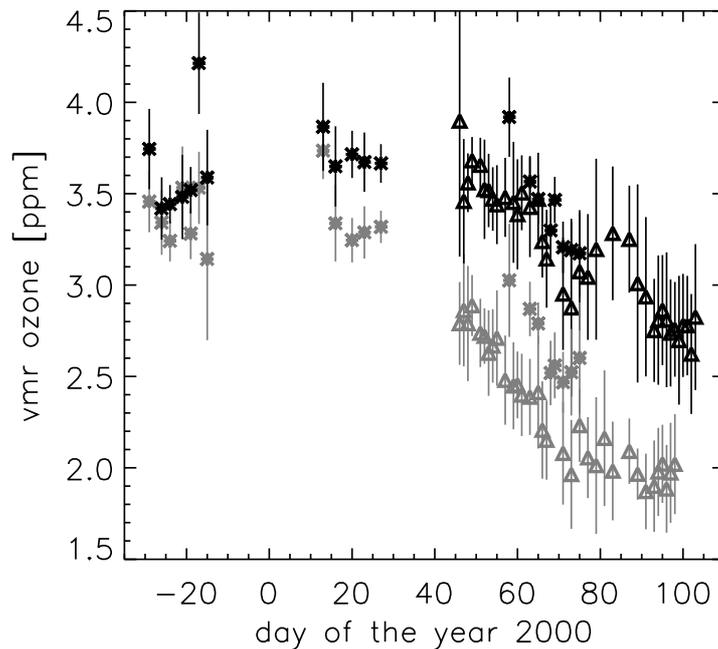


Abbildung 8.4: Tagesmittelwerte von ASUR (Sterne) und GOME (Dreiecke) Ozonmessungen für eine potentielle Temperatur von 475 K (grau) und 550 K (schwarz). Jeweils gilt: Sterne: ASUR und Dreiecke: GOME. Die Fehler geben die Summe von Standardabweichung des Mittelwertes und der Unsicherheit für die entsprechende potentielle Temperatur wieder. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

eine Abnahme in den Ozonmischungsverhältnissen um etwa  $1,05 \pm 0,1$  ppm für beide Isentropen. Die ASUR-Ozonmessungen zeigen zwischen der ersten und der zweiten Teilkampagne einen leichten Anstieg um  $0,3 \pm 0,1$  ppm auf der 550 K Isentropen, während auf der 475 K Isentrope die Mischungsverhältnisse im Mittel konstant blieben. In der zweiten Hälfte des Winters nahmen das Ozon um  $0,55 \pm 0,1$  ppm auf der 550 K, beziehungsweise um  $0,75 \pm 0,1$  ppm auf der 475 K Isentrope ab.

Zusammenfassend zeigen die GOME-Messungen einen Ozonverlust zwischen 17% und 25% bis Tag 75 und zwischen 30% und 37% bis Tag 90 für die beiden Isentropen. Für ASUR ergibt sich ein maximaler Verlust zwischen 15% und 23%. Innerhalb derselben Meßperiode zeigen beide Instrumente folglich eine gute Übereinstimmung.

Die Zunahme zwischen der ersten und zweiten Teilkampagne in den ASUR-Messungen ergibt sich durch das unterschiedlich starke Absinken von potentieller Temperatur und Ozon. Diese entspricht einem Transport von Ozon senkrecht zu den Isentropen gleicher potentieller Temperatur. Die Annahme, die

potentielle Temperatur sei eine Erhaltungsgröße trifft daher für die hier gezeigten Zeiträume nicht mehr zu und die Trennung von Dynamik und Chemie ist nicht eindeutig gegeben.

### 8.3.2 Diabatisches Absinken aus Heizratenberechnungen

Eine Verbesserung der im vorigen Unterkapitel vorgestellten Methode stellt die Berechnung des diabatischen Absinkens aus Heizraten für eine gegebene Isentrope dar. Sie berücksichtigt das diabatische Absinken beziehungsweise Aufsteigens von Luftmassen und Ozon auf der Isentrope. Nach Braathen et al. (1994) ist die zeitliche Änderung der Ozonmischungsverhältnisse auf der Isentrope, die durch diabatische Bewegungen verursacht wird, gegeben mit:

$$\frac{\partial O_3}{\partial t} = Q \left( \frac{p_0}{p} \right)^\kappa \frac{\partial O_3}{\partial \Theta} \quad (8.1)$$

mit der diabatischen Heizrate  $Q$ , dem Druck auf der Isentrope  $p$  und dem Bodendruck  $p_0$ . Es gilt weiter  $\kappa = R/c_p$ , wobei  $R$  der idealen Gaskonstanten und  $c_p$  der spezifischen Wärme von trockener Luft bei konstantem Druck entspricht.  $\partial O_3/\partial \Theta$  schließlich ist der vertikale Gradient der Ozonmischungsverhältnisse bezüglich der potentiellen Temperatur. Die diabatischen Heizraten wurden mit dem Modell von Shine (1991) berechnet (siehe hierzu auch Kapitel 7.2.2).

Des weiteren läßt sich aus Gleichung (8.1) das sogenannte „passive Ozon“ ableiten. Dazu wird für einen bestimmten Zeitpunkt das Ozonmischungsverhältnis genommen und alle nachfolgenden dynamisch bedingten Änderungen aufaddiert. Wird nun als Startwert ein Zeitpunkt vor Beginn des chemischen Ozonabbaus gewählt, so ergibt die Differenz von „passivem Ozon“ und dem durch das Absinken aus Heizratenberechnungen korrigierten Ozon den chemischen Verlust.

In Abbildung 8.5 sind die gemittelten Ozonmischungsverhältnisse und das berechnete „passive Ozon“ auf der 475 K Isentrope dargestellt. Die Abweichungen in den Ozonwerten (Diamanten) gegenüber Abbildung 8.4 ergeben sich durch die Berücksichtigung des diabatischen Absinkens und Aufsteigens von Ozon auf die Isentrope (vergleiche Abbildung 7.6). Das „passive Ozon“ wurde für drei verschiedene Startzeiten berechnet: Ende November 1999 (ge-

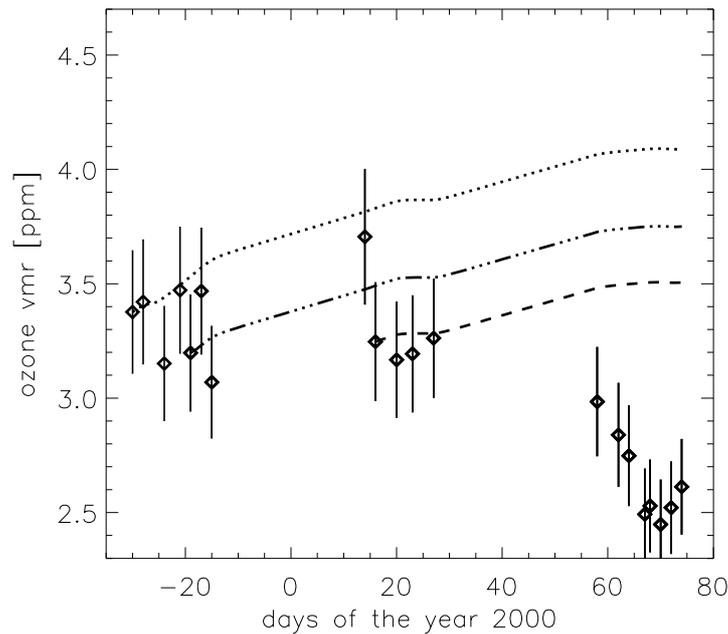


Abbildung 8.5: Aus der Heizratenberechnung für ASUR gemittelte Ozonwerte (Diamanten) und errechnetes „passives Ozon“ (Linien) für die 475 K Isentrope. Für das „passive Ozon“ gelten folgende Tage als Berechnungsgrundlage: 30. November 1999: gepunktet, 12. Dezember 1999: strichpunktet und 16. Januar 2000: gestrichelt. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

punktete Linie), Mitte Dezember 1999 (strichgepunktete Linie) und Mitte Januar 2000 (gestrichelte Linie). Für Mitte März 2000 ergeben sich für das „passive Ozon“ Werte von 3,5 ppm (Startpunkt: 30. November 1999), 3,75 ppm (12. Dezember 1999) und 4,1 ppm (16. Januar 2000). Es sei hier angemerkt, daß ASUR keine kontinuierlichen Messungen über den gesamten Winter durchgeführt hat. Für die Perioden zwischen den Teilkampagnen wurde daher eine mittlere Heizrate der beiden jeweiligen Teilkampagnen zu Grunde gelegt.

Die Wahl des 30. November 1999 als Startpunkt (gepunktete Linie) erweist sich als nicht sinnvoll, da zu diesem Zeitpunkt der Vortex noch nicht abgeschlossen war. Den Beginn der Berechnung auf Mitte Januar zu legen (gestrichelte Linie) führt hingegen zu einer Unterschätzung des Verlustes, da von der Annahme ausgegangen wird, daß zuvor kein chemisch bedingter Ozonverlust stattgefunden hat. Diese Thesen werden auch durch den Vergleich mit den SLIMCAT-Modell in Abbildung 8.6 unterstützt. Hierbei ist neben den ASUR-Werten, Ozon (schwarz) und „passives Ozon“ (grau) von SLIMCAT auf der 475 K Isentrope eingezeichnet. Die SLIMCAT-Daten wurden aus Gründen der

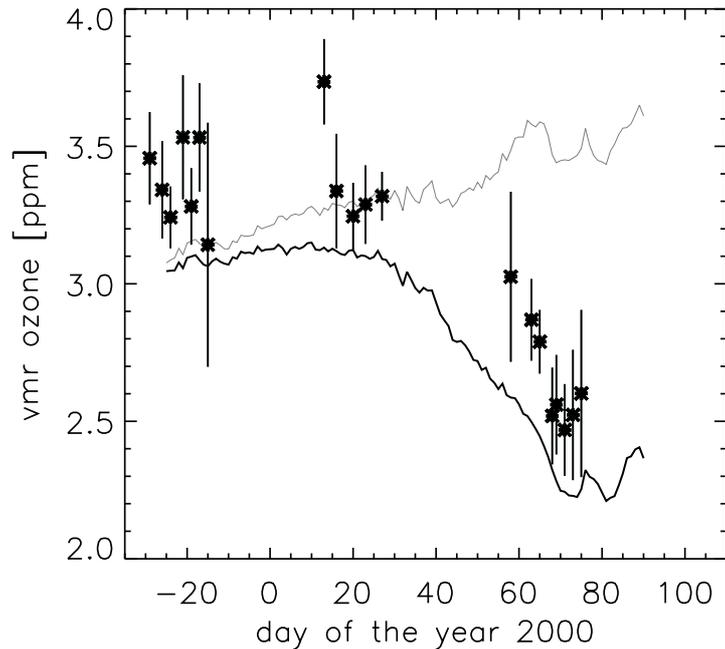


Abbildung 8.6: Ozon auf der 475 K Isentrope. ASUR-Messung (schwarze Sterne), SLIMCAT „aktives Ozon“ (schwarze Linie) und SLIMCAT „passives Ozon“ (graue Linie). Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

Vergleichbarkeit mit der Höhenauflösung des ASUR-Instrumentes geglättet. SLIMCAT zeigt für die gesamte Zeit geringere Volumenmischungsverhältnisse als ASUR. Gleichzeitig wird bereits im Januar 2000 eine signifikante Differenz zwischen Ozon und „passivem Ozon“ berechnet. Sondenmessungen ergaben ebenfalls in der ersten Januarhälfte, also vor der zweiten Teilkampagne von ASUR, einen chemischen Ozonverlust zwischen 0,1 ppm und 0,2 ppm (Rex et al. (2001)).

Wird der 12. Dezember 1999 als Startwert zu Grunde gelegt, so folgt ein chemischer Ozonabbau von  $1,25 \pm 0,1$  ppm auf der 475 K Isentrope. Dies entspricht einem Verlust von etwa 33% über den Winter 1999/2000. In guter Übereinstimmung errechnet SLIMCAT für den Tag 75 eine Abnahme um 1,3 ppm, was einem Verlust von etwa 37% entspricht (für die geglätteten Ozonwerte).

Die richtige Wahl des Tages, an dem die Berechnung des „passiven Ozons“ beginnt ist von entscheidender Bedeutung. Es muß sichergestellt werden, daß der Vortex schon hinreichend abgeschlossen ist, aber vor diesem Tag noch kein chemischer Ozonabbau stattgefunden hat.

### 8.3.3 Diabatisches Absinken aus $N_2O$ -Messungen

Bei dieser Methode wird der chemische Ozonverlust aus der Korrelation mit zeit- und ortsnahen  $N_2O$  ASUR-Messungen abgeschätzt (siehe auch Proffitt et al. (1989) und Proffitt et al. (1990)). Der Vorteil beruht darauf, daß in der unteren Stratosphäre die Lebensdauer von  $N_2O$  sehr viel größer ist als die der potentiellen Temperatur. Dies hat zur Folge, daß Schichten mit konstantem  $N_2O$  Mischungsverhältnis präziser den diabatischen Bewegungen der Luft nachfolgen, als dies für Isentropen der Fall ist (Plumb (1992)).

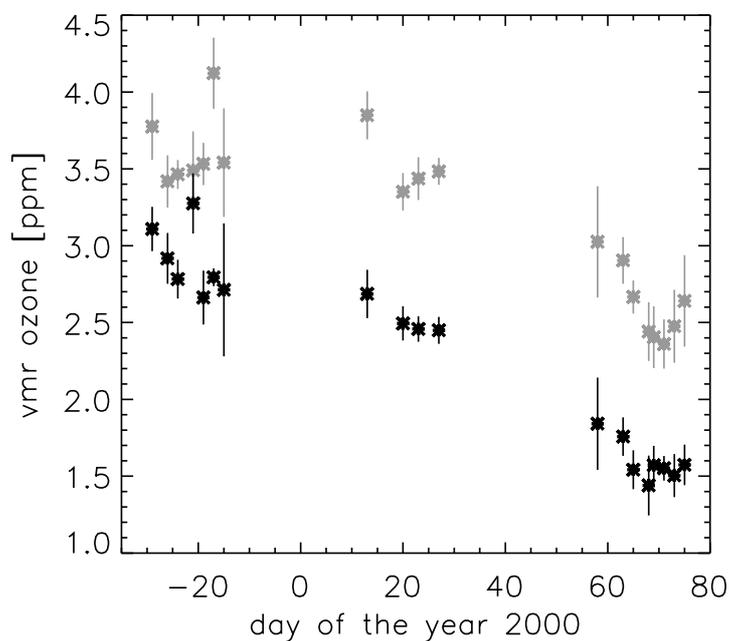


Abbildung 8.7: Tagesmittelwerte von ASUR Ozonmessungen innerhalb des Vortex für die 100 ppb (grau) und 200 ppb (schwarz)  $N_2O$  Schicht. Die Fehler entsprechen der Summe von Standardabweichung des Mittelwertes und Unsicherheit für die gegebene  $N_2O$  Schicht. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

Bei der Korrelation der beiden Spurengase wird Ozon in Abhängigkeit von  $N_2O$  betrachtet. Die Höhenskala wird also durch Mischungsverhältnisse von  $N_2O$  ausgedrückt. Abbildung 8.7 zeigt die Entwicklung von Tagesmittelwerten der Ozonmessungen innerhalb des polaren Vortex für ein  $N_2O$ -Mischungsverhältnis von 100 ppb (grau) und 200 ppb (schwarz) im Winter 1999/2000. Die 100 ppb Schicht entspricht einer Höhe von etwa 21,3 km (512 K) Mitte Dezember 1999 und etwa 19 km (469 K) Mitte März

2000. Die Schicht von 200 ppb  $N_2O$  befand sich Mitte Dezember 1999 bei einer Höhe von etwa 18 km (445 K) und Mitte März 2000 bei 16 km (405 K; vergleiche hierzu Tabellen 7.1 und 7.2).

Wie auch schon in den vorherigen Unterkapiteln, werden wiederum bei der Bestimmung des Ozonverlustes nur die letzten Flüge der ersten Teilkampagne berücksichtigt. Zwischen der ersten und zweiten Teilkampagne wurde ein sehr geringer Ozonverlust beobachtet mit  $0,1 \pm 0,1$  ppm bei 100 ppb beziehungsweise  $0,25 \pm 0,1$  ppm bei 200 ppb  $N_2O$ . Der entscheidende Ozonabbau fand zwischen der zweiten und dritten Teilkampagne statt. Dies spiegelt gut die ClO Messungen wider, die für Januar und März 2000 eine hohe Chloraktivierung zeigten. Über den gesamten Zeitraum ergibt sich ein chemischer Ozonverlust für 100 ppb  $N_2O$  von  $1,10 \pm 0,1$  ppm und für 200 ppb von  $1,15 \pm 0,1$  ppm. Dies entspricht einer Reduktion um 30% bis 40% für eine etwa 3 km dicke Schicht, im Höhenbereich von 16 bis 19 km.

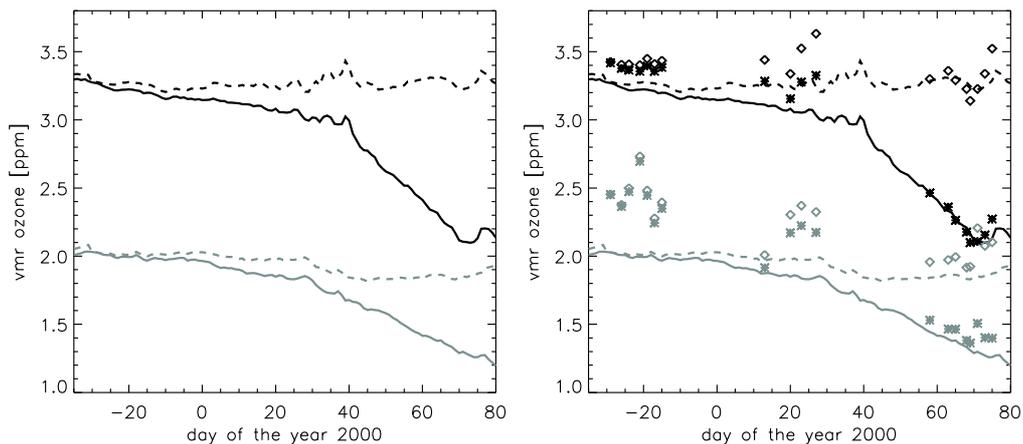


Abbildung 8.8: SLIMCAT Ozon (durchgezogene) und „passiv Ozon“ (gestrichelt) für die 100 ppb (schwarz) und 200 ppb (grau) SLIMCAT  $N_2O$ -Schicht. Mit eingezeichnet auf der rechten Seite ist SLIMCAT Ozon (Sterne) und „passiv Ozon“ (Diamanten) für die 100 ppb (schwarz) und 200 ppb (grau) ASUR  $N_2O$  Schicht. Der 31. Dezember 1999 wurde als Tag Null gewählt.

Zum Vergleich wurden die Ozonergebnisse des SLIMCAT-Modells für zwei Schichten konstanten  $N_2O$ 's bestimmt (Abbildung 8.8). Die beiden durchgezogenen Linien geben diese Korrelation für 100 ppb (schwarz) und 200 ppb (grau) wieder. Gestrichelt ist das modellierte „passive Ozon“ für die jeweilige  $N_2O$ -Schicht dargestellt. Da in Kapitel 7 gezeigt wurde, daß SLIMCAT das Ab-

sinken unterschätzt, wurde zusätzlich in der rechten Hälfte von Abbildung 8.8 die Korrelation von SLIMCAT Ozon (Sterne) und „passiv Ozon“ (Diamanten) mit den ASUR  $N_2O$ -Messungen eingezeichnet. Für beide Seiten wurden die SLIMCAT-Daten zuvor mit der Höhenauflösung von ASUR geglättet. Aus den reinen SLIMCAT-Daten ergibt sich ein Ozonverlust von 36% (24%) für 100 ppb (200 ppb)  $N_2O$ . Die Korrelation von SLIMCAT Ozon und ASUR  $N_2O$  führt zu einem Verlust von etwa 34% für beide Schichten.

Die Korrelation mit ASUR  $N_2O$  ergibt für SLIMCAT und ASUR Ozonverluste in guter Übereinstimmung. Es zeigt sich jedoch, daß die Berechnung eines zu geringen Absinkens im SLIMCAT-Modell zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes führen kann.

### 8.3.4 $N_2O$ Korrelation über den Vortexrand

Die zuvor gezeigten Methoden setzen voraus, daß quasi kontinuierlich über den gesamten Winter hinweg Messungen durchgeführt wurden. Wird jedoch nur in einer bestimmten Periode des Winters gemessen, so können diese nicht genutzt werden. Eine Methode, die in früheren Arbeiten verwendet wurde, ist die Bestimmung des Ozonverlustes aus einer Korrelation mit  $N_2O$ , wobei Messungen innerhalb und außerhalb des Vortex miteinander verglichen werden. Diese Methode wurde zum Beispiel in den Arbeiten von Urban (1997) und Bremer (1997) angewendet und führte zu mit anderen Instrumenten vergleichbaren Ozonverlusten.

Bei dieser Methode wird wiederum davon ausgegangen, daß die Korrelation zweier langlebiger Spurenstoffe (zum Beispiel Ozon ohne chemischen Ozonabbau und  $N_2O$ ) in der Atmosphäre konstant bleibt. Die Änderungen wären somit rein durch den chemischen Abbau eines der beiden Stoffe bedingt.

In Abbildung 8.9 ist eine solche Korrelation von Ozon und  $N_2O$  über den Vortexrand, für Januar (links) und März 2000 (rechts) dargestellt. Die graue Linie gibt jeweils die Korrelation für innerhalb, die schwarze für außerhalb und die hell graue für den Randbereich des Vortex wieder. Die Hochachse wurde invers dargestellt, da die  $N_2O$  Mischungsverhältnisse mit steigender Höhe abnehmen. Die dargestellten Werte entsprechen jeweils dem Mittel der Teilkampagne aller Einzelmessungen des entsprechenden Bereiches. Zu erkennen ist die Abnahme der Mischungsverhältnisse von Ozon über den Vortexrand hin-

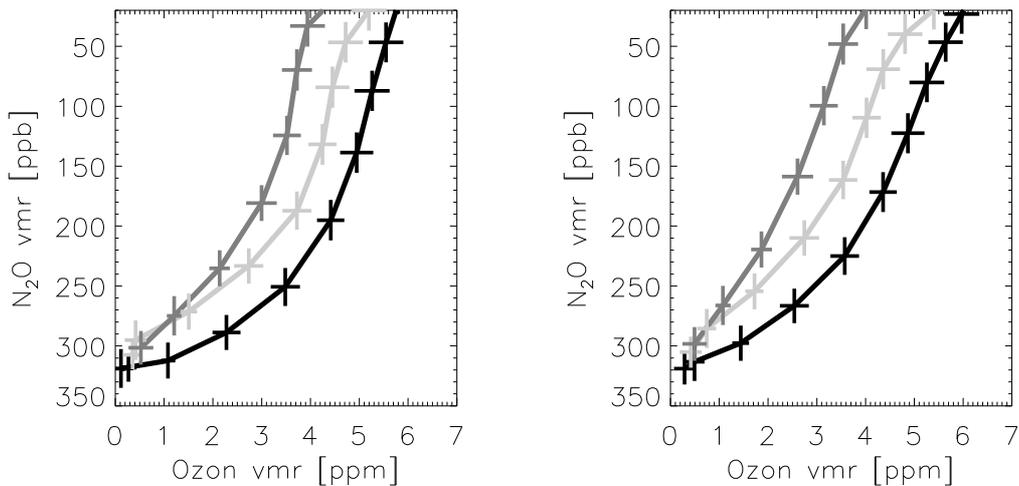


Abbildung 8.9: Korrelation von ASUR Ozon und  $N_2O$ -Messungen im Januar (links) und März (rechts) 2000 über den Vortexrand hinweg. Die Messungen wurden jeweils drei Bereichen zugeteilt: innerhalb des Vortex (grau), zwischen innerem und äußerem Vortexrand (hellgrau), sowie zwischen äußerem Vortexrand und äußerem Rand minus  $10^\circ$  äquivalenter Breite (schwarz).

weg für beide Monate. Wird diese Abnahme als reiner chemischer Ozonabbau interpretiert, so folgt für Januar 2000 ein Verlust von 31% (100 ppb  $N_2O$ ) beziehungsweise 37% (200 ppb). Für die Teilkampagne im März 2000 steigt der Verlust auf 48% (100 ppb) bis 54% (200 ppb).

Im Vergleich mit den anderen Methoden erweist sich der hier abgeschätzte Verlust als zu groß. Besonders das Ergebnis für die Teilkampagne im Januar 2000 von mehr als 30% Ozonverlust ist nicht realistisch, zeigt doch die Korrelation innerhalb des Vortex für die erste Winterhälfte nur eine Abnahme um maximal 0,25 ppm, was einem Verlust von maximal 10% ergeben würde (vergleiche Abbildung 8.7).

Bei dieser Methode wird vorausgesetzt, daß die Korrelation nur durch chemischen Ozonabbau verändert wird. Diese Annahme ist jedoch nicht zutreffend. Horizontale Mischprozesse können ebenso zu einer Veränderung der Korrelation führen. Innerhalb des Vortex kann es bei der Bildung zu unterschiedlich starkem diabatischen Absinken kommen, wodurch sich Tracer-Tracer Korrelationen bei horizontalen Mischprozessen ändern können (Ray et al. (2001)). Ist die Bildung jedoch abgeschlossen und es treten keine großskaligen Störungen des Vortex auf, so bleibt die Korrelation konstant. Für die Region außerhalb des Vortex ist dies nicht gegeben. Eine Transportbarriere wie der polare Vortex

existiert nicht. Somit kann ständig Luft aus tropischen und mittleren Breiten in die höheren Breite nachfließen. Die dabei mittransportierte ozonreiche Luft bewirkt wiederum eine Veränderung der Korrelation von  $N_2O$  und Ozon.

Die Schlußfolgerungen, die in früheren Arbeiten gezogen wurden (zum Beispiel von Bremer (1997) und Urban (1997)), in denen diese Methode zur Bestimmung des chemischen Ozonverlustes angewendet wurde, treffen folglich nicht zu.

## 8.4 Diskussion der Ergebnisse

Die, für die unterschiedlichen Methoden berechneten Ozonverluste aus ASUR-Messungen sind in Tabelle 8.1 noch einmal zusammengefaßt.

Augenscheinlich stimmen die Ergebnisse für die dynamische Korrektur durch Heizraten und  $N_2O$ -Korrelation gut miteinander überein. Hierbei ist zu berücksichtigen, daß 100 ppb  $N_2O$  im März 2000 einer potentiellen Temperatur von etwa 470 K entsprechen.

Die reinen Isentropen als Grundlage für die dynamische Korrektur zu nutzen führt hingegen zu einer Unterschätzung des Verlustes. Die Isentropen gelten nur für kurze Zeiträume von bis zu 10 Tagen als dynamischer Tracer. Bei längeren Zeiträumen finden hingegen Transportprozesse durch die Isentropen hindurch statt und verschieben somit die Tracer-Relation. Dies führt durch den Nachtransport von ozonreicherer Luft aus höheren Höhen zu einer Unterschätzung des „wahren“ Ozonverlustes.

Tabelle 8.1: Übersicht des mittleren Ozonverluste über den Winter 1999/2000, die mit Hilfe verschiedener Methoden zur dynamischen Korrektur aus ASUR-Messungen abgeschätzt wurden.

| Methode             | Verlust   | Bereich           |
|---------------------|-----------|-------------------|
| Isentropen          | 15% / 23% | 550 K / 475 K     |
| Heizraten           | 33%       | 475 K             |
| $N_2O$ -Messungen   | 30% / 40% | 100 ppb / 200 ppb |
| über den Vortexrand | 48% / 54% | 100 ppb / 200 ppb |

Ein entsprechender Effekt tritt beim Vergleich von korrelierten Messungen

von Ozon und  $N_2O$  innerhalb und außerhalb des Vortex auf. Hierbei kommt es zu einer Überschätzung des Ozonverlustes innerhalb des Vortex. Ebenso wie bei den Isentropen ist hier die Erhaltung des Korrelationsverhältnisses nur bedingt gegeben. Durch die raschen horizontalen und vertikalen dynamischen Prozesse außerhalb des Vortex wird das Verhältnis der Korrelation verschoben. Dies führt zu einer Fehlinterpretation des ursprünglichen Verhältnisses und ergibt zu große Ozonverluste.

Im Winter 1999/2000 wurde von einer Vielzahl von Instrumenten, Ozon gemessen und der Verlust über den Winter berechnet. Newman und Harris (2001) haben in ihrer Veröffentlichung die Ergebnisse der meisten der, an dem THESEO 2000/SOLVE Projekt beteiligten Messungen zusammengetragen. Hierbei stellte sich heraus, daß für den Zeitraum vom 20. Januar bis zum 12. März 2000 ein Verlust zwischen 0,7 und 2,3 ppm für eine potentielle Temperatur von 450 K abgeschätzt wird. Die ASUR-Messungen, die ebenfalls in der Aufstellung mit aufgeführt wurden, ergeben für diesen Zeitraum einen Verlust von  $1,05 \pm 0,1$  ppm. Wichtig ist hierbei, daß keine Rücksicht auf unterschiedliche Höhenauflösungen der Messungen genommen wurde. Dieser Umstand kommt besonders zum Tragen, da Rex et al. (2001) einen Ozonverlust von bis zu 70% für eine etwa 1 km dünne Schicht bei einer Höhe von etwa 18 km abgeschätzt haben. Über einen 3 km breiten Bereich errechneten sie noch einen Verlust von mehr als 50%. Diese Ergebnisse beruhen auf Sondenmessungen, die eine Höhenauflösung von etwa 150 m besitzen. Die Höhenauflösung des ASUR-Instrumentes beträgt in diesem Höhenbereich etwa 8 km. Dies führt zwangsläufig zu einer Unterschätzung des tatsächlichen Ozonabbaus aus ASUR-Messungen.

Das SLIMCAT-Modell hat für den Winter 1999/2000 ebenfalls einen Ozonverlust von über 70% bei einer potentiellen Temperatur von 450 K errechnet (Sinnhuber et al. (2000)). Die Glättung der Profile mit der Höhenauflösung des ASUR-Instrumentes reduzieren diesen Verlust auf 24% bis 36% in der unteren Stratosphäre. Der von ASUR gemessene Ozonverlust von 30% bis 40% für den selben Höhenbereich zeigt somit eine sehr gute Übereinstimmung. Die Diskrepanz zu den Verlusten, die aus Messungen der anderen Instrumente bestimmt wurden, ist demzufolge hauptsächlich auf die geringere Höhenauflösung von ASUR zurückzuführen.

Für eine vernünftigen Vergleich ist eine Anpassung von unterschiedlicher Höhenauflösung unumgänglich.

**Teil IV**

# **Zusammenfassung und Ausblick**



## 9 Zusammenfassung und Fazit

Abschließend sollen in diesem Kapitel die Ergebnisse der Arbeit noch einmal zusammengefaßt werden.

### 9.1 Zusammenfassung der Arbeit

Die Zielsetzung der Arbeit war die Bestimmung des chemischen Ozonabbaus in der Stratosphäre. Hierzu wurden Messungen des flugzeuggetragenen Radiometers ASUR ausgewertet und interpretiert.

In den ersten drei Kapiteln wurden die Grundlagen, die für das ASUR-Instrument und die Auswertung der Daten von Relevanz sind, kurz umrissen.

Der zweite und dritte Teil der Arbeit beschäftigten sich mit Auswertung, Vergleichen mit anderen Instrumenten und Interpretation der ASUR-Messungen. Hierbei wurde für Vergleiche und Interpretation der Schwerpunkt auf den Winter 1999/2000 gelegt, da die zu Verfügung stehende Datenmenge von  $\text{N}_2\text{O}$  und Ozonmessungen neue Interpretationsansätze erlaubt, wie sie in vorherigen Wintern für ASUR nicht möglich waren.

Die Winter 1998/1999 und 1999/2000 unterschieden sich grundlegend. Der Winter 1998/1999 war einer der wärmsten der letzten 10 Jahre. Die Temperaturen in der Stratosphäre fielen nur innerhalb zweier kurzer Perioden, Ende Dezember 1998 und Anfang Februar 1999 unter die Temperatur  $T_{\text{NAT}}$ , bei der die Bildung von PSCs möglich ist. Die fünf Meßflüge umfassende Kampagne des ASUR-Instrumentes, im Rahmen des THESEO HIMSPEC Projektes, wurde zwischen Ende Januar und Anfang Februar 1999 durchgeführt. In diesem Zeitraum wurden sehr hohe Temperaturen in der Stratosphäre gemessen, die gegen Ende der Kampagne unter die Temperatur  $T_{\text{NAT}}$  fielen.

Im Gegensatz dazu war der Winter 1999/2000 einer der kältesten Winter der letzten 10 Jahre. Die Temperatur  $T_{\text{NAT}}$  wurde in weiten Bereichen des Vortex

von Mitte November 1999 bis Mitte März 2000 unterschritten. Im Rahmen des europäisch-amerikanischen THESEO 2000/SOLVE Projektes führte das ASUR-Instrument Messungen auf 23 Meßflügen durch. Das Projekt war in drei Teilkampagnen gegliedert, die im Dezember 1999, Januar und März 2000 durchgeführt wurden. Fast die gesamte Entwicklung des polaren Vortex konnte so dokumentiert werden.

Die Vielzahl der am THESEO 2000/SOLVE Projekt beteiligten Instrumente ermöglicht Vergleiche und Validation der ASUR-Messungen. Dies ist insbesondere für neue Moleküle, wie  $\text{CH}_3\text{Cl}$  mit schwächeren Linienintensitäten wichtig.

Nach der Erweiterung des Frequenzbereiches des ASUR-Instrumentes 1998 können Messungen in einem kontinuierlichen Bereich von 604,3 bis 662,3 GHz durchgeführt werden. Einer der neuen Spurenstoffe ist der dynamische Tracer  $\text{CH}_3\text{Cl}$ . Die in dieser Arbeit vorgestellten Auswertungen von  $\text{CH}_3\text{Cl}$  stellen die ersten dar, die für Messungen des ASUR-Instrumentes durchgeführt wurden. Die Vergleiche mit dem Mark IV-Instrument zeigen eine weniger gute Übereinstimmung. Die Messungen von Mark IV zeigen über den gesamten Höhenbereich niedrigere Mischungsverhältnisse. Es ist jedoch nicht auszuschließen, daß zumindest die Mark IV-Messung im Dezember 1999 für  $\text{CH}_3\text{Cl}$  nicht repräsentativ für den Vortex war. Die große Streuung der Einzelmessungen bei ASUR deutet darauf hin, daß die Meßzeit zu gering gewählt wurde. Diese sollte bei zukünftigen Meßreihen verlängert werden.

Die Vergleiche von Ozonmessungen führten zu dem Ergebnis, daß die Mischungsverhältnisse von ASUR um bis zu 10% gegenüber Sondenmessungen überschätzt werden. Die Abweichung gegenüber dem AROTEL-Lidar ist in einer ähnlichen Größenordnung, oberhalb von 20 km und größer bei geringeren Höhen. Der Vergleich mit dem DIAL-Instrument wird durch dessen geringe oberste Meßhöhe beschränkt und zeigt mit einer Abweichung von 20% die höchste Differenz. Der Quervergleich zwischen Sonden und Lidar zeigt ebenfalls Abweichungen von bis zu 10% für AROTEL und 40% für DIAL um welche die Werte der Lidar-Instrumente geringer ausfallen. Die ASUR-Messungen von Ozon zeigen also eine Tendenz die absoluten Mischungsverhältnisse um 5% bis 10% zu überschätzen.

Die Vergleiche von ASUR  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen zeigen nur geringe Abweichungen. Dabei wurden für Mark IV Tagesmittelwerte und für *ER-2* Mittelwerte der

Teilkampagnen verglichen. Dies ist gleichzeitig ein Indiz für die gute Durchmischung des Vortex in der zweiten Winterhälfte.

Der dritte Teil der Arbeit widmete sich der Bestimmung des chemischen Ozonverlustes im Winter 1999/2000. Für die Trennung von dynamischen und chemischen Prozessen ist eine Abschätzung des diabatischen Absinken im polaren Vortex notwendig. In Kapitel 7 wurden zwei Methoden zur Bestimmung des Absinkens miteinander verglichen. Beide Methoden nutzen ASUR-Messungen von Ozon beziehungsweise  $N_2O$  aus. Die Ozonmessungen werden zur Berechnung von Heizraten herangezogen, die wiederum das Auf- und Absteigen der Luftmassen beschreiben. Bei den  $N_2O$ -Messungen ermöglicht dessen chemische Stabilität in der unteren Stratosphäre die direkte Bestimmung des Absinkens der Luftmassen aus den Messungen.

Die  $N_2O$ -Messungen von anderen Instrumenten ergaben ein durchschnittliches Absinken von  $27,4 \pm 0,9$  m pro Tag. Aus den Heizraten folgte ein Absinken von durchschnittlich 26,5 m pro Tag. Diese Ergebnisse stimmen im Rahmen der Fehler überein. Im Vergleich mit den Ergebnissen anderer Instrumente und des SLIMCAT-Modells zeigt sich, daß ASUR sehr gut mit den Ergebnissen des vereinheitlichten  $N_2O$ -Datensatz der *ER-2* übereinstimmt. Über den gesamten Winter hinweg scheinen die ASUR Messungen das Absinken jedoch immer noch leicht zu unterschätzen. Dies wird durch den großangelegten Tracer-Vergleich von Greenblatt et al. (2001) bestätigt. Sie geben das Absinken mit  $65 \pm 12$  K in einem Höhenbereich zwischen 40 ppb und 280 ppb, für den gesamten Winter an. Die ASUR-Messungen ergeben ein maximales Absinken von  $42 \pm 3$  K. Die Diskrepanz ist auf die starke Glättung der ASUR-Profile zurückzuführen. Sie führt vor allem oberhalb von 100 ppb zu einer Unterschätzung des Absinkens. Der Vergleich hat auch gezeigt, daß das Absinken im SLIMCAT-Modell ebenfalls unterschätzt wird.

Für die Berechnung des chemischen Ozonverlustes wurden verschiedene Methoden angewendet und miteinander verglichen. Es zeigte sich, daß die Betrachtung, die Ozon ausschließlich auf Isentropen verfolgt, den Verlust weit unterschätzt. Isentropen stellen für die hier betrachteten Zeitskalen keine Erhaltungsgröße mehr da und sind folglich ungeeignet als dynamischer Tracer. Als ebenfalls ungeeignet hat sich die Methode herausgestellt, den Verlust durch Vergleiche der Korrelation von Ozon und  $N_2O$  innerhalb und außerhalb des Vortex zu bestimmen. Hierbei wird der Verlust stark überschätzt. Wiederum ist die Erhaltung des Verhältnisses der beiden Tracer nicht gegeben.

Aus der Korrelation von Ozon und  $N_2O$ -Messungen nur innerhalb des Vortex ergab sich ein chemischer Verlust von 30% bis 40% in der unteren Stratosphäre. Dies wird in guter Übereinstimmung durch die Heizratenberechnung bestätigt, die zu einem Verlust von 34% führt.

Sondenmessungen (Rex et al. (2001)) und Berechnungen des SLIMCAT-Modells (Sinnhuber et al. (2000)) zeigten einen Verlust von bis zu 70% für einen sehr schmalen Höhenbereich. Die Glättung der SLIMCAT Ergebnisse mit der Höhenauflösung von ASUR ergab einen chemischen Ozonverlust /index Ozonverlust von durchschnittlich etwa 34% in der unteren Stratosphäre und stimmt sehr gut mit den ASUR-Ergebnissen überein.

## 9.2 Fazit

Für den Winter 1999/2000 ließ sich aus den ASUR-Messungen in guter Übereinstimmung mit anderen Instrumenten das diabatische Absinken innerhalb des Vortex bestimmen. Dies gelang ebenfalls für den chemischen Ozonverlust.

Einschränkend muß bemerkt werden, daß dies nur auf Grund der quasi kontinuierlichen Messungen über den gesamten Winter möglich war. Hätte das ASUR-Instrument nur an einer der drei Teilkampagnen teilgenommen, so hätten Messungen anderer Instrumente, beziehungsweise Modellrechnungen mit herangezogen werden müssen, die das Absinken im Vortex für die fehlenden Zeiträumen beschreiben.

Die  $\text{CH}_3\text{Cl}$ -Messungen weisen für den Winter 1999/2000 eine sehr große Streuung in den Einzelmessungen auf. Diese ist größer, als es die  $\text{N}_2\text{O}$ -Messungen, die einen recht homogenen Vortex in der zweiten Winterhälfte zeigen, vermuten lassen. Eine Vergrößerung der Meßdauer könnte hier Abhilfe schaffen und müßte auf weiteren Meßkampagnen überprüft werden.



## 10 Ausblick

Das ASUR-Instrument wird auch in Zukunft noch an Meßkampagnen teilnehmen. Das Forschungsinteresse verschiebt sich zwar in Richtung untere Stratosphäre, ein Bereich in dem ASUR an seine meßtechnischen Grenzen stößt, doch bestehen bereits Überlegungen ein weiteres *Akusto-optisches-Spektrometer* (AOS) einzubauen. Die resultierende größere Bandbreite ermöglicht eine Verwendung der Informationen in den Linienflügeln und sollte Messungen bis zur Flughöhe erlauben.

In der nahen Zukunft steht außerdem die Validation des Satellitenexperimentes *SCIAMACHY* (*Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric CHartography*) an. Hierbei wird ASUR, neben anderen Instrumenten an Bord der *Falcon* zwei Meßkampagnen durchführen. Die Kampagnen werden sich auf Messungen von tropischen bis hin zu polaren Breiten erstrecken.

Ein weiteres Projekt, an dem ASUR augenblicklich beteiligt ist, ist die Leoniden-Kampagne in Zusammenarbeit mit der NASA. Hierbei sollen Spurenstoffänderungen in der Mesosphäre und oberen Stratosphäre durch Meteorite gemessen werden.

Eine offene Frage bleibt die dynamischen Bewegungen in der Stratosphäre. Sie werden von den Modellen nur zu einem Teil richtig wiedergegeben. Hier besteht immer noch Forschungsbedarf, wobei ASUR mit seinen  $N_2O$ -Messungen sicherlich einen Beitrag leisten kann.



# Anhang



# Abkürzungen

| Akronym | Bedeutung  |
|---------|--|
| ACATS   | Airborne Chromatograph for Atmospheric Trace Species               |
| ALIAS   | Aircraft Laser Infrared Absorption Spectrometer                    |
| AOS     | Akusto-Optisches Spektrometer                                      |
| AROTEL  | Airborne Raman Ozone and Temperature Lidar                         |
| ASUR    | Airborne SUBmillimeter Radiometer                                  |
| CCD     | Charge Coupled Device  |
| CTM     | Chemical Transport Modell  |
| DIAL    | UV Differential Absorption Lidar                                   |
| DLR     | Deutsches Zentrum für Luft und Raumfahrt                           |
| DOAS    | Differential Optical Absorption Spectroscopy                       |
| EASOE   | European Arctic Stratospheric Ozone Experiment                     |
| ECC     | Airborne Raman Ozone and Temperature Lidar                         |
| ECMWF   | European Centre for Medium-Range Weather Forecasts                 |
| ESA     | European Space Agency  |
| ESRANGE | European Space Range   |
| EU      | European Union   |
| FCKW    | Fluor-Chlor Kohlenwasserstoff                                      |
| FTIR    | Fourier-Transform Infrared Radiometer                              |
| GOME    | Global Ozone Monitoring Experiment                                 |
| HALOE   | Halogen Occultation Experiment                                     |
| HDPE    | High Density Polyethylen   |
| HIMSPEC | High- and Midlatitude Speciation of Chlorine and Nitrogen Families |
| MIPAS   | Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding          |
| NAD     | Nitric Acid Dihydrat (Salpetersäure-Dihydrat)                      |
| NASA    | National Aeronautic and Space Administration                       |
| NAT     | Nitric Acid Trihydrat (Salpetersäure-Trihydrat)                    |
| NCEP    | National Center for Environmental Predictions                      |
| OEM     | Optimal Estimation Methode   |

| Akronym   | Bedeutung   |
|-----------|---|
| PLL       | Phase Locked Loop   |
| PSC       | Polar Stratospheric Clouds (Polare Stratosphärenwolken)               |
| PV        | Potential Vorticity (potentielle Wirbelstärke)                        |
| RAL       | Rutherford Appleton Laboratory  |
| RAM       | Radiometer für Atmosphärenphysikalische Messungen                     |
| RDF       | Reverse Domain Filling  |
| SAGE      | Stratospheric Aerosol and Gas Experiment                              |
| SCIAMACHY | Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric CHartographY |
| SESAME    | Second European Stratospheric Arctic and Midlatitude Experiment       |
| SIS       | superconductor insulator superconductor                               |
| SLS       | Submillimeter Limb Sounder  |
| SOLVE     | SAGE III Ozone Loss and Validation Experiment                         |
| SRON      | Space Research Organisation of the Netherlands                        |
| STS       | Supercooled ternary solution (Unterkühlte ternäre Lösung)             |
| THESEO    | Third European Stratospheric Experiment on Ozone                      |
| TOMS      | Total Ozone Mapping Spectrometer                                      |
| UARS      | Upper Atmosphere Research Satellite                                   |
| UV        | ultra-violett   |
| UKMO      | United Kingdom Meteorological Office                                  |
| VMR       | volume mixing ratio (Volumenmischungsverhältnis)                      |
| WAS       | Whole Air Sampler   |
| WMO       | World Meteorological Organization                                     |
| ZF        | Zwischenfrequenz  |

## Literaturverzeichnis

- Andrews, D. G., Holton, J. R. und Leovy, C. B., 1987: *Middle Atmosphere Dynamics*. New York: Academic Press.
- Avallone, L. M. und Prather, M. J., 1997: Tracer-tracer correlations: Three-dimensional model simulations and comparisons to observations. *J. Geophys. Res.*, **102**, 19 233–19 246.
- Bates, D. R. und Nicolet, M., 1950: The photochemistry of atmospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, **55**, 301.
- Bauer, R., Engel, A., Franken, H., Klein, E., Kulesa, G., Schiller, C., Schmidt, U., Borchers, R. und Lee, J., 1994: Monitoring the structure of the Arctic polar vortex over northern Scandinavia during EASOE: Regular N<sub>2</sub>O profile observations. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 1211–1214.
- Bhartia, P. K., McPeters, R. D., Mateer, C. L., Flynn, L. E. und Wellenmeyer, C., 1996: Algorithm for estimation of vertical ozone profiles from backscattered ultraviolet technique. *J. Geophys. Res.*, **101**, 18 739–18 806.
- Braathen, G. O., Rummukainen, M., E., K., Schmidt, U., Dahlback, A., Jorgensen, T. S., Fabian, R., Rudakov, V. V., Gil, M. und Borchers, R., 1994: Temporal development of ozone within the Arctic vortex during the winter of 1991/92. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 1407–1410.
- Bremer, H., 1997: *Auswertung ausgewählter Meßflüge der Frühjahrskampagne 1997 mit Hilfe des modifizierten Submillimeterwellenradiometers ASUR*. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- Bremer, H., Kleinböhl, A., König, v., M., Küllmann, H., Künzi, K., Goede, A. und Hetzheim, H., 2000: Stratospheric Ozone Decrease Observed by ASUR During the Arctic Winter 1999/2000. In *Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium*, Sapporo.
- Bremer, H., König, v., M., Kleinböhl, A., Küllmann, H., Künzi, K., Bramstedt, K., Burrows, J. P., Eichmann, K.-U., Weber, M. und Goede, A. P. H., 2001: Ozone depletion observed by ASUR during the Arctic Winter 1999/2000. *J. Geophys. Res.* In press.

- Brewer, A. W. und Milford, J. R., 1960: The Oxford-Kew ozone sonde. In *Proc. R. Soc.*, London.
- Browell, E. V., Butler, C. F., Ismail, S., Robinetter, P. A., Carter, A. F., Higdon, N. S., Toon, O. B., Schoeberl, M. R. und Tuck, A. F., 1990: Airborne Lidar Observations in the Wintertime Arctic Stratosphere: Polar Stratospheric Clouds. *Geophys. Res. Lett.*, **17**.
- Browell, E. V., Ismail, S. und Grant, W. B., 1998: Differential absorption lidar (DIAL) measurements from air and space. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 399–410.
- Bühler, S., 1999: *Microwave Limb Sounding of the Stratosphere and Upper Troposphere*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Bühler, S., Engeln, v., A., Urban, J., Wohlgemuth, J. und Künzi, K. F., 1999: *The impact of cirrus clouds*. Tech. Rep., ESTEC. Contract No 12053.
- Burrows, J. P., Weber, M., Buchwitz, M., Rozanov, V., Ladstätter-Weissenmayer, A., Richter, A., DeBeek, R., Hoogen, R., Bramstedt, K., Eichmann, K.-U. und Eisinger, M., 1999: The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission concept and first scientific results. *J. Atmos. Sci.*, **56**, 151–175.
- Carlsaw, K. S., Peter, T. und Clegg, S. L., 1997: Modeling the composition of liquid stratospheric aerosols. *Rev. Geophys.*, **35**, 125–154.
- Chapman, S., 1930: On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere. *Philos. Mag.*, **10**, 369.
- Chipperfield, M., 1996: *The SLIMCAT Offline Transport Model*. Tech. Rep., Centre for Atmospheric Science, University of Cambridge.
- Chipperfield, M. und Pyle, J., 1998: Model sensitivity studies of Arctic ozone depletion. *J. Geophys. Res.*, **103**, 28 389–28 403.
- Crewell, S., 1993: *Submillimeter-Radiometrie mit einem flugzeuggetragenen Empfänger zur Messung atmosphärischer Spurenstoffe*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Crewell, S., Cheng, D., Zafra, d., R. L. und Trimble, C., 1995: Millimeter wave spectroscopic measurements over the South Pole, 1. A study of stratospheric dynamics using N<sub>2</sub>O observations. *J. Geophys. Res.*, **100**, 20 839–20 844.
- Crutzen, P. J., 1970: The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, **96**, 320–325.
- de Beek, R., Hoogen, R., Rozanov, V. und Burrows, J. P., 1997: Ozone profile retrieval from GOME satellite data I: Algorithm description. In *Proceedings of the Third ERS-2 Symposium*, Florence.

- de Valk, J. P. J. M. M., Chipperfield, M. P., Crewell, S., Franke, B., Goede, A. P. H., Jonge, d., A., Küllmann, H., Lee, A. M., Mees, J., Urban, J. und Wohlgemuth, J., 1997: Airborne Heterodyne Measurements of stratospheric ClO, HCl, O<sub>3</sub> and N<sub>2</sub>O during SESAME-I, over Northern Europe. *J. Geophys. Res.*, **102**, 1391–1398.
- Eichmann, K.-U., 2001: *Ozonverteilung der Nordhemisphäre gemessen mit GOME: Einfluß von Dynamik und Chemie in der Stratosphäre*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Eichmann, K.-U., Weber, M., Bramstedt, K. und Burrows, J. P., 2001: Ozone depletion in the NH winter/spring 1999/2000 as measured by GOME on ERS-2. *J. Geophys. Res.* Submitted.
- EORCU, 1999: *The Northern Hemisphere Stratosphere in the Winter of 1998/1999*. Tech. Rep., European Ozone Research Coordinating Unit.
- EORCU, 2000: *The Northern Hemisphere Stratosphere in the Winter and Spring 1999/2000*. Tech. Rep., European Ozone Research Coordinating Unit.
- Fahey, D. W., Gao, R. S., Carslaw, K. S., Kettleborough, J., Popp, P. J., Northway, M. J., Holecek, J. C., Ciciora, S. C., McLaughlin, R. J., Thompson, T. L., Winkler, R. H., Baumgardner, D. G., Gandrud, B., Wenneberg, P. O., Dhaniyala, S., McKinney, K., Peter, T., Salawitch, R. J., Bui, T. P., Elkins, J. W., Webster, C. R., Atlas, E. L., Jost, H., Wilson, J. C., Herman, R. L., Kleinböhl, A. und von König, M., 2001: The Detection of Large HNO<sub>3</sub>-Containing Particles in the Winter Arctic Stratosphere. *Science*, **291**, 1026–1031.
- Farman, J. C., Gardiner, B. G. und Shanklin, J. D., 1985: Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO<sub>x</sub>/NO<sub>x</sub> interaction. *Nature*, **315**, 207–210.
- Fortuin, J. P. F. und Kelder, H., 1998: An ozone climatology based on ozone-sonde and satellite measurements. *J. Geophys. Res.*, **103**, 31 709–31 734.
- Goldsmith, P. F., 1982: *Infrared and Millimeter Waves: Quasi-optical techniques at millimeter and submillimeter wavelengths*. New York: Academic Press.
- Greenblatt, J. B., Jost, H.-J., Loewenstein, M., Podolske, J. R., Hurst, D. F., Elkins, S. M., J. W. ans Schauffler, Atlas, E. L., Herman, R. L., Webster, C. R., Bui, T. P., Moore, F. L., Ray, E. A., Voemel, H., Oltmans, S., Blavier, J.-F., Toon, G. C., Stachnik, R. A., Müller, M., Engel, A., Schmidt, U., Borchers,

- R., Bremer, H., Pierce, R. B., Manney, G. L., Michelsen, H. A., Sinnhuber, B.-M., Chipperfield, M. und Lefèvre, F., 2001: Experimental Determination of Vortex Subsidence for the 1999-2000 Arctic Winter, and Comparison With Models. *J. Geophys. Res.* Accepted.
- Hansen, G. und Hoppe, U. P., 1997: Lidar Observations of polar stratospheric clouds and stratospheric temperature in winter 1995/96 over Northern Norway. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 131–134.
- Heaps, W. und Burris, J., 1996: Airborne Raman Lidar. *Appl. Opt.*, **35**.
- Holton, J. R., 1992: *An Introduction to Dynamic Meteorology*. Academic Press.
- Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglas, A. R., Rood, R. B. und Pfister, L., 1995: Stratosphere-troposphere exchange. *Rev. Geophys.*, **33**, 403–439.
- Hoogen, R., Rozanov, V. und Burrows, J. P., 1999: Ozone profiles from GOME satellite data: Algorithm description and first validation. *J. Geophys. Res.*, **104**, 8263–8280.
- Hsu, K. J. und DeMore, W. B., 1994: Rate constants for the reactions of OH with HC<sub>3</sub>Cl, CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>, CHCl<sub>3</sub>, and CH<sub>3</sub>Br. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 805–808.
- Hurst, D. F., Schauffler, S. M., Grennblatt, J. B., Jost, H., Herman, R. L., Elkins, J. W., Romashkin, P. A., Atlas, E. L., Donnelly, S. G., Podolske, J. R., Loewenstein, M., Webster, C. R., Flesch, G. J. und Scott, D. C., 2001: The construction of a unified, high-resolution nitrous oxide data set for ER-2 flights during SOLVE. *J. Geophys. Res.* In press.
- Jost, H., Loewenstein, M., Pfinster, L., Margitan, J. J., Chang, A. Y., Salawitch, R. J. und Michelsen, H. A., 1998: Laminae in the tropical middle stratosphere: Origin and age estimation. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 4337–4340.
- Klein, U., 1993: *Aufbau und Betrieb eines breitbandigen, bodengestützten Millimeter-Wellen-Radiometers zur Messung atmosphärischer Spurenstoffe*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Klein, U., Wohltmann, I., Lindner, K. und Künzi, K. F., 2001: Ozone Depletion and Chlorine Activation in the Arctic Winter 1999/2000 observed in Ny-Ålesund. *J. Geophys. Res.* In press.
- Komhyr, W. D., 1969: Electrochemical concentration cell for gas analysis. *Ann. Geophys.*, **25**.
- Komhyr, W. D., Barnes, R. A., Brothers, G. B., Lathrop, J. A. und Opper-

- mann, D. P., 1995: Electrochemical concentration cell ozonesonde performance evaluation during STOIC 1989. *J. Geophys. Res.*, **100**, 9231–9244.
- Koop, T., Carslaw, K. S. und Peter, T., 1997: Thermodynamic stability and phase transitions of PSC particles. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 2199–2202.
- Kraus, J. D., 1966: *Radio Astronomy*. New York: McGraw-Hill.
- Langer, J., 1999: *Messung des arktischen stratosphärischen Ozons: Vergleich der Ozonmessungen in Ny-Å lesund, Spitzbergen, 1997 und 1998*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Liebe, H. J., Hufford, G. A. und Cotton, M. G., 1993: Propagation modeling of moist air and suspended water/ice particles at frequencies below 1000 GHz. In *52nd Specialists' Meeting of the Electromagnetic Wave Propagation Panel*, Palma de Mallorca, Spain.
- Lindner, K., Barry, B., Klein, U., Künzi, K. F., Wohltmann, I., Forkman, P., Elgered, G., Eriksson, P., Jimenez, C., Sharokhi, J. und Winnberg, A., 1999: Ground-Based Water Vapour Microwave Radiometry in the THESEO/WAVE Project. In *Fifth European Symposium on Polar Stratospheric Ozone*, St. Jean-de-Luz, Frankreich.
- Manney, G. L., Michelson, H. A., Irion, F. W., Toon, G. C., Gunson, M. R. und Roche, A. E., 2000: Lamination and polar vortex development in the fall from ATMOS long-lived trace gases observed during November 1994. *J. Geophys. Res.*, **105**, 29 023–29 038.
- Manney, G. L. und Sabutis, J. L., 2000: Development of the polar vortex in the 1999/2000 Arctic winter stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 2589–2592.
- Martin, D. H. und Puppelt, E., 1969: Polarised Interferometric Spectrometry for the Millimetre and Submillimetre Spectrum. *Infrared Phys.*, **10**, 105–109.
- McElroy, M. B., Salawitch, R. J., Wofsy, S. C. und Logan, J. A., 1986: Antarctic ozone hole: Reduction due to synergistic interactions of chlorine and bromine. *Nature*, **321**, 759–763.
- McGee, T., Gross, M., Singh, U., Butler, J. und Kimvilankani, P., 1995: An improved stratospheric ozone lidar. *Opt. Eng.*, **34**.
- Mees, J., Crewell, S., Nett, H., Lange, d., G., Stadt, v., H., Kuipers, J. J. und Panhuyzen, R. A., 1995: ASUR – An Airborne SIS receiver for Atmospheric Measurements of Trace Gases at 625 to 760 GHz. *IEEE Trans. Microwave Theory and Techniques*, **43**.
- Michelsen, H. A., Manney, G. L., Gunson, C. P., M. R. Rinsland und Zander,

- R., 1998: Correlations of stratospheric abundances of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O derived from ATMOS measurements. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 2777–2780.
- Molina, J. M. und Rowland, F. S., 1974: Stratospheric sink for chlorofluoromethans: Chlorine catalyzed destruction of ozone. *Nature*, **249**, 810–812.
- Molina, L. T. und Molina, J. M., 1987: Production of Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub> from the self-reaction of the ClO radical. *J. Phys. Chem.*, **91**, 433–436.
- Müller, R., Grooss, J.-U., McKenna, D. S., Crutzen, P. J., Brühl, C., Russel, I., J. M. und Tuck, A. F., 1997: 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.
- Nakazawa, T., Sugawara, S., Inoue, G., Machida, T., Makshyutov, S. und Mukai, H., 1997: Aircraft measurements of the concentrations of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, and CO and the carbon and oxygen isotopic ratios of CO<sub>2</sub> in the troposphere over Russia. *J. Geophys. Res.*, **102**, 3843–3859.
- Nash, E. R., Newmann, P. A., Rosenfield, J. E. und Schoeberl, M. R., 1996: An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity. *J. Geophys. Res.*, **101**, 9471–9478.
- Newman, P. A. und Harris, N. R. P., 2001: An overview of the SOLVE - THESEO 2000 campaign. *J. Geophys. Res.* In press.
- Peter, T., 1997: Microphysics and heterogeneous chemistry of polar stratospheric clouds. *Ann. Rev. Phys. Chem.*, **48**, 785–822.
- Plumb, M. K. W., R. A. Ko, 1992: Interrelationships between mixing ratios of long-lived stratospheric constituents. *J. Geophys. Res.*, **97**, 10 145–10 156.
- Plumb, R. A., Waugh, D. W. und Chipperfield, M. P., 2000: The effect of mixing on tracer relationships in the polar vortices. *J. Geophys. Res.*, **105**, 10 047–10 062.
- Proffitt, M. H., Fahey, K. K. K., D. W. und Tuck, A. F., 1989: High latitude ozone loss outside the Antarctica ozone hole. *Nature*, **332**, 233–237.
- Proffitt, M. H., Margitan, J. J., K., K. K., Loewenstein, M., Podolske, J. R. und Chan, K. R., 1990: Ozone loss in the Arctic polar vortex inferred from high altitude aircraft measurements. *Nature*, **347**, 31–36.
- Randel, W. J., Wu, F., Russel III, J. M., Roche, A. und Waters, J. W., 1998: Seasonal Cycles and QBQ Variations in Stratospheric CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub>O Observed in UARS HALOE Data. *J. Atmos. Sci.*, **55**, 163–185.
- Ray, E. A., Moore, F. L., Elkins, J. W., Hurst, D. F., Romashkin, P. A., Dutton, G. S. und Fahey, D. W., 2001: Descent and Mixing in the 1999-2000 Northern

- Polar Vortex Inferred From In Situ Tracer Measurements. *J. Geophys. Res.*, in press.
- Rex, M., Salawitch, R. J., Harris, N. R. P., von der Gathen, P., Braathen, G. O., Schulz, A., Deckelman, H., Chipperfield, M., Sinnhuber, B.-M., Reimer, E., Alfier, R., Bevilacqua, R., Hopple, K., Fromm, J., M. Lumpe, Küllmann, H., Kleinböhl, A., Bremer, H., König, v., M., Künzi, K., Toohey, D., Vömel, 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, B. R., Claude, H., Davies, J., Davies, W., De Backer, H., Dier, H., Dorokhov, V., Fast, H., Kondo, Y., Kyrö, E., Litynska, Z., Mikkelsen, I. S., Molyneux, M. J., Moran, E., Nagai, T., Nakane, H., Parrondo, C., Ravegnani, F., Skrivankova, P., Viatte, P. und Yushkov, V., 2001: Chemical depletion of Arctic ozone in winter 1999/2000. *J. Geophys. Res.* In press.
- Rodgers, C. D., 1976: Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation. *Rev. Geophys. Space Phys.*, **14**, 609–624.
- Rodgers, C. D., 1990: Characterization and error analysis of profile retrieval from remote sounding measurements. *J. Geophys. Res.*, **95**, 5587–5595.
- Romashkin, P. A., Hurst, D. F., Elkins, J. W., Dutton, G. S., Fahey, D. W., Dunn, R. E., Moore, F. L., Myers, R. C. und Hall, B. D., 2001: In situ measurements of long lived trace gases in the lower stratosphere by gas chromatography. *J. Atmos. Ocean. Technol.* In press.
- Rosolen, C., Dierich, P., Michet, D., Lecacheaux, A., Palacin, F., Robiliard, R., Rigeaud, F. und Vola, P., 1994: *Wideband acousto optical spectrometer*. final report on workpackage 2411, ESA.
- Schauffler, S. M., Atlas, E. L., Blake, D. R., Flocke, F., Lueb, R. A., Lee-Taylor, J. M., Stroud, V. und Travnicek, W., 1999: Distribution of brominated organic compounds in the troposphere and lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **104**, 21 513–21 535.
- Schoeberl, M. R., Lait, L. R., Newmann, P. A. und Rosenfield, J. E., 1992: The structure of the polar vortex. *J. Geophys. Res.*, **97**, 7859–7882.
- Shine, K. P., 1987: The middle atmosphere in the absence of dynamical heating fluxes. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, **113**, 603–633.

- Shine, K. P., 1991: On the cause of the relative greenhouse strength of gases such as the halocarbons. *J. Atmos. Sci.*, **48**, 1513–1518.
- Sinnhuber, B.-M., 1998: *Variabilität der arktischen Ozonschicht: Analyse und Interpretation bodengebundener Millimeterwellenmessungen*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Sinnhuber, B.-M., Chipperfield, M. P., Davies, S., Burrows, J. P., Eichmann, K.-U., Weber, M., Gathen, v., P., Guirlet, M., Cahill, G., Lee, A. und Pyle, J., 2000: Large loss of total ozone during the Arctic winter of 1999/2000. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 3473–3476.
- Sobel, A. H., Plumb, R. A. und Waugh, D. W., 1997: Methods of calculating transport across the polar vortex edge. *J. Atmos. Sci.*, **54**, 2241–2260.
- Solomon, S., 1999: Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history. *Rev. Geophys.*, **37**, 275–316.
- Sparling, e., 1997: Diabatic cross-isentropic dispersion in the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **10**, 25 817–25 829.
- Stolarski, R. S., Krueger, A. J., Schoeberl, M. R., McPeters, R. D., Newmann, P. A. und Alpert, J. C., 1986: Nimbus 7 satellite measurements of the spring-time Antarctic ozone decrease. *Nature*, **322**, 808–811.
- Sutton, R. T., Maclean, H., Swinbank, R., O'Neill, A. und Taylor, F. W., 1994: High-resolution stratospheric tracer fields estimated from satellite observations using Lagrangian trajectory calculations. *J. Atmos. Sci.*, **51**, 2995–3005.
- Toon, G. C., 1991: The JPL Mk IV Interferometer. *Optics and Photonics News*, **2**, 19–21.
- Urban, J., 1997: *Messungen der stratosphärischen Spurengase ClO, O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>O und OH mittels flugzeuggetragener Submillimeterwellen-Radiometrie bei 650 und 2500 GHz*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- von König, M., 2001: *Chloraktivierung und PSC-Bildung in der arktischen Stratosphäre: Analyse und Interpretation flugzeuggetragenen Submillimeterwellenmessungen*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- von König, M., Bremer, H., Eyring, V., Goede, A., Hetzheim, H., Kleipool, Q., Küllmann, H. und Künzi, K., 2000: An airborne submm radiometer for the observation of stratospheric trace gases. In *Microwave Radiometry and Remote Sensing of the Earth's Surface and Atmosphere*, Pampaloni, P. und Paloscia, S., Hrsg., VSP Utrecht.
- Vowinkel, B., 1988: *Passive Mikrowellenradiometrie*. Braunschweig: Friedr. Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft mbH.

- Wallace, J. M. und Hobbs, P. V., 1977: *Atmospheric Science*. New York: Academic Press.
- Waters, J. W., 1976: Absorption and emission by atmospheric gases. *Methods of Experimental Physics: Part B*, **12**, 142–176.
- Weber, M., Eichmann, K.-U., Bramstedt, K., Burrows, J. P., Lee, A. und Sinnhuber, B.-M., 2000: Vertical ozone distribution in the northern hemisphere in late winter/early spring between 1996/97 and 1999/2000: GOME satellite observation of Arctic chemical ozone loss in the lower stratosphere and comparison with the 3D chemical transport model SLIMCAT. In *Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium*, Sapporo.
- Webster, C. R., May, R. D., Trimble, C. A., Chave, R. G. und Kendall, J., 1994: Aircraft (ER-2) Laser Infrared Absorption Spectrometer (ALIAS) for in situ stratospheric measurements of HCl, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, NO<sub>2</sub>, and HNO<sub>3</sub>. *Appl. Opt.*, **33**, 454–472.
- WMO, 1986: *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1985*. Global Ozone research and Monitoring Project 16, World Meteorological Organization.
- WMO, 1992: *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1991*. Global Ozone research and Monitoring Project 25, World Meteorological Organization.
- WMO, 1995: *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1994*. Global Ozone research and Monitoring Project 37, World Meteorological Organization.
- WMO, 2000: *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1999*. Global ozone research and monitoring project, World Meteorological Organization.



# Liste der Veröffentlichungen

## Fachzeitschriften

H. Bremer, M. von König, A. Kleinböhl, H. Küllmann, K. Künzi, K. Bramstedt, J. P. Burrows, K.-U. Eichmann, M. Weber, A. P. H. Goede: Ozone depletion observed by ASUR during the Arctic Winter 1999/2000. – *J. Geophys. Res.*, in press, 2001.

M. Rex, R. J. Salawich, N. R. P. Harris, P. von der Gathen, G. O. Braathen, A. Schulz, H. Deckelmann, M. Chipperfield, B.-M. Sinnhuber, E. Reimer, R. Alfier, R. Bevilacqua, K. Hoppel, M. Fromm, J. Lumpe, H. Küllmann, A. Kleinböhl, H. Bremer, M. von König, K. Künzi, D. Toohey, H. Vömel, E. Richard, K. Aikin, H. Jost, J. B. Greenblatt, M. Loewenstein, J. R. Podolske, C. R. Webster, G. J. Flesch, D. C. Scott, R. L. Herman, J. W. Elkins, E. A. Ray, F. L. Moore, D. F. Hurst, P. Romashkin, G. C. Toon, B. Sen, J. J. Margitan, P. Wennberg, R. Neuber, M. Allart, B. R. Bojkov, H. Claude, J. Davies, W. Davies, H. De Backer, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, Y. Kondo, E. Kyrö, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. J. Molyneux, E. Moran, T. Nagai, H. Nakane, C. Parrondo, F. Ravagnani, P. Skrivankova, P. Viatte, V. Yushkov: Chemical depletion of Arctic ozone in winter 1999/2000. – *J. Geophys. Res.*, in press, 2001.

T. Sugita, T. Yokota, H. Nakajima, H. Kanzawa, H. Nakane, H. Gernandt, V. Yushkov, K. Shibasaki, T. Deshler, Y. Kondo, S. Godin, F. Goutail, J.-P. Pommereau, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Jeseck, J.-B. Renard, H. Bösch, R. Fitzenberger, K. Pfeilsticker, M. von König, H. Bremer, H. Küllmann, H. Schlager, J. J. Margitan, B. Stachnik, G. C. Toon, K. Jucks, W.A. Traub, D.G. Johnson, I. Murata, H. Fukunishi, Y. Sasano: Validation of ozone measurements from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS). – *J. Geophys. Res.*, in press, 2001.

Greenblatt, J. B., H.-J. Jost, M. Loewenstein, J. R. Podolske, D. F. Hurst, J. W. Elkins, S. M. Schauffler, E. L. Atlas, R. L. Herman, C. R. Webster, T. P. Bui, F. L. Moore, E. A. Ray, H. Voemel, S. Oltmans, J.-F. Blavier, G. C. Toon, R. A. Stachnik, M. Müller, A. Engel, U. Schmidt, R. Borchers, H. Bremer, R. B. Pierce, G. L. Manney, H. A. Michelsen, B.-M. Sinnhuber, M. Chipperfield, F. Lefèvre: Experimental Determination of Vortex Subsidence for the 1999-2000 Arctic Winter, and Comparison With Models. – *J. Geophys. Res.*, accepted, 2001

Kleinböhl, A., H. Bremer, M. von König, H. Küllmann, K. Künzi, A.P.H. Goede, E. Browell, W.B. Grant, G.C. Toon, T. Blumenstock, B. Galle, B.-M. Sinnhuber, M. Chipperfield: Vortexwide Denitrification of the Arctic Polar Stratosphere in Winter 1999/2000 Determined by Remote Observations. – *J. Geophys. Res.*, submitted, 2001.

von König, M., H. Bremer, A. Kleinböhl, H. Küllmann, K. Künzi, A.P.H. Goede, E. Browell, W.B. Grant: Using gas-phase nitric acid as an indicator of PSC composition. – *J. Geophys. Res.*, accepted, 2001.

## Konferenzbeiträge und Workshops

Kleinböhl, A., H. Bremer, M. von König, H. Küllmann, K. Künzi, A. P. H. Goede, E. Browell, W. B. Grant: Measurements of Nitric Acid during the Arctic Winter 1999/2000 with the Airborne Submillimeter Radiometer (ASUR) - Indications of denitrification and chlorine activation. – *Proceedings Workshop on Nitrogen Oxides in the Lower Stratosphere and Upper Troposphere, Heidelberg, Germany*, in preparation, 2001.

Bremer, H., A. Kleinböhl, M. von König, H. Küllmann, K. Künzi, A. P. H. Goede, H. Hetzheim: Stratospheric ozone decrease observed by ASUR during the Arctic Winter 1999/2000. – *Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 3.7.-8.7.2000*, pp. 259-260.

von König, M., H. Bremer, V. Eyring, A. P. H. Goede, H. Hetzheim, Q. L. Kleipool, H. Küllmann, K. Künzi: An Airborne Submm Radiometer for the Observation of Stratospheric Trace Gases. – in: Pampaloni, P., S. Paloscia (Hrsg.): *Microwave Radiometry and Remote Sensing of the Earth's Surface and Atmosphere*, pp. 409-415, 2000.

Bremer, H., M. von König, H. Küllmann, K. Künzi, A. P. H. Goede, Q. L. Kleipool, H. Hetzheim: First Results of the Airborne Submillimeter Radiometer (ASUR) during the THESEO Winter 1998/1999. – *Air pollution research report 73, Proceedings Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone, St. Jean de Luz, France, 27.9.-1.10.1999*, pp. 209-211.

Hetzheim, H., H. Bremer, M. von König, H. Küllmann, K. Künzi, A. P. H. Goede, Q. L. Kleipool: Adaptive controlled Retrieval of BrO Profiles of ASUR Measurements in Winter '99. – *Air pollution research report 73, Proceedings Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone, St. Jean de Luz, France, 27.9.-1.10.1999*, pp. 260-263.

Kleipool, Q. L., F. Hellmich, A. P. H. Goede, H. Schrijver, M. van den Broek, K. Künzi, H. Küllmann, H. Bremer, M. von König, H. Hetzheim: Measurements of ClO and HCl profiles during the arctic winter of 1999 with consequences for ozone depletion. – *Air pollution research report 73, Proceedings Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone, St. Jean de Luz, France, 27.9.-1.10.1999*, pp. 276-279.

von König, M., H. Bremer, H. Küllmann, K. Künzi, A. P. H. Goede, Q. L. Kleipool, H. Hetzheim, M. Chipperfield, B.-M. Sinnhuber: Measurement of chlorine monoxide with the Airborne Submillimeter Radiometer (ASUR) during winter 1998/99. – *Air pollution research report 73, Proceedings Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone, St. Jean de Luz, France, 27.9.-1.10.1999*, pp. 280-283

Küllmann, H., H. Bremer, M. von König, K. Künzi, A. P. H. Goede, Q. L. Kleipool, H. Hetzheim: The ASUR Sensor: A state-of-the-art remote sensing instrument for stratospheric trace gas measurements. – *Air pollution research report 73, Proceedings Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone, St.*

*Jean de Luz, France, 27.9.-1.10.1999, pp. 699-702*

Urban, J., M. Birk, H. Bremer, M. van den Broek, S. Crewell, B. Ellison, V. Eyring, B. Franke, S. Claude, A. P. H. Goede, H. Golstein, T. de Graauw, P. Hartogh, D. Hausamann, H. Hetzheim, H. Hübers, A. de Jonge, B. Kerridge, Q. L. Kleipool, M. von König, H. Küllmann, K. Künzi, J. Mees, G. Mellmann, B. Moyna, G. Näveke, H. Nett, C. Rosolen, H. Schaeffer, G. Schwaab, R. Siddans, H. van de Stadt, R. Titz, P. de Valk, T. Wehr, P. Wesselius, N. Whyborn, J. Wohlgemuth, P. Zimmermann: Recent Airborne Heterodyne Receivers for the Submillimeter-wave Range. – *Proceedings International Workshop on Submm-wave Observation of Earth's Atmosphere from Space, Earth Observation Research Center, National Space Development Agency of Japan, Tokyo, 27.-29.1.1999, pp. 151-163.*

von König, M., H. Bremer, V. Eyring, H. Küllmann, J. Urban, J. Wohlgemuth, K.F. Künzi, M. van den Brook, A.P.H. Goede, A.R.W. de Jonge, Q. Kleipool, N.D. Whyborn, H. Hetzheim, G. Schwaab, M.P. Chipperfield: Trace gas measurements of ClO, HCl, Ozone and N<sub>2</sub>O in the Arctic winter 1997. – *Air pollution research report 66, Proceedings of the 4th Europ. Symp. on Stratos. Ozone Res., Schliersee, Germany, 22-26 Sept. 1997*

## Berichte

Küllmann, H., H. Bremer, A. Kleinböhl, M. von König, K. Künzi, A.P.H. Goede (contribution) – in: Braathen, G., et al.: Improved understanding of stratospheric ozone loss by measurements and modelling contribution to THESEO 2000 and SOLVE. *Final Report*, EU contract No. EVK2-CT-1999-00047, June 2001.

Küllmann, H., H. Bremer, M. von König, K. Künzi, (contribution) – in: Oelhaf, H., et al.: HIMSPEC - High and middle latitude specification of the nitrogen, chlorine and hydrogen chemical families by airborne measurements,

*Final Report*, EU contract No. ENV4-CT97-0532, 2001.

H. Bremer: Das erweiterte, flugzeuggetragene ASUR-Radiometer und ausgewählte Messungen der Winterkampagne 1996/97. – Diplomarbeit Physik, *Universität Bremen*, November 1997.



## Danksagung

Ich möchte mich zu allererst bei Professor Künzi für die Betreuung der Promotionsarbeit bedanken. Er ermöglichte mir außerdem die aktive Teilnahme an diversen nationalen und internationalen Konferenzen, sowie an den drei Meßkampagnen HIMSPEC I + II und THESEO 2000/SOLVE.

Bei Professor Bleck-Neuhaus möchte ich mich für die Übernahme des Ko-referats bedanken.

Für die Unterstützung, die gute Zusammenarbeit und die vielen hilfreichen Diskussionen mit den weiteren Mitgliedern der ASUR-Gruppe möchte ich mich bei: Armin Kleinböhl, Miriam von König und Harry Küllmann bedanken.

Bedanken möchte ich mich auch bei Gunter Näveke, der das ASUR-Instrument seit Jahren „in Schuß“ hält und mit dem ich einen gemeinsamen Monat in den USA verbringen durfte.

Bei Mark Weber möchte ich mich für für die vielen hilfreichen Diskussionen bedanken, durch die unsere Veröffentlichung so geworden ist wie sie jetzt gedruckt wird.

Kai-Uwe Eichmann und Kai Lindner haben mir einige Bilder für die Promotionsarbeit zur Verfügung gestellt. Das sie sich dafür die Zeit genommen haben möchte ich mich bei beiden bedanken.

Bei der RAM-Gruppe: Nicole Buschmann, Michael Hoock, Kai Lindner und Ingo Wohltmann möchte ich mich für die vielen gemeinsamen Mittagessen und Diskussionsrunden bedanken.

Bei allen denen, die mir ihre Meßdaten zur Verfügung gestellt haben möchte ich mich ebenfalls bedanken: Ed Browell und Bill Grant (DIAL), John Burris (AROTEL), Ingo Wohltmann (RAM), Geoff Toon (Mark IV), Dale Hurst (*unified* N<sub>2</sub>O), Kai-Uwe Eichmann (GOME), sowie Martyn Chipperfield und Björn-Martin Sinnhuber (SLIMCAT).

Ich möchte mich auch bei allen anderen Kollegen des Instituts für das gute Arbeitsklima bedanken.

Mein besonderer Dank gilt meinen Eltern, die mein Studium ermöglicht haben und noch immer da sind, wenn ich sie brauche.

Abschliessend möchte ich mich bei meiner Schwester bedanken, die meine emails ertragen mußte und mich aufgenommen hat, wenn ich mal in ihrer Gegend war.

# Index

äquivalente Breite, 69, 77, 80, 107, 124, 125

a priori, 53, 54, 89

absolute Wirbelstärke, 22

Absorptionskoeffizient, 47

Absorptionsquerschnitt, 48

anthropogen, 11, 76

AOS, 40, 149

AROTEL, 83, 85, 89, 93, 98, 144

ASUR, 31, 34, 59, 65, 72, 117, 119, 129, 140, 143, 149

Atmosphärensignal, 31, 33, 37

Auflösungsmatrix, 55

Averaging kernel matrix, 55

backend, 36, 40

barometrische Höhenformel, 19

Chapman-Zyklus, 24, 25

Chlor, 27, 77, 123

Chloraktivierung, 27, 123, 125, 136

Chlordeaktivierung, 27, 125

Chlorradikale, 25

Chlorschicht, 28

ClO-BrO-Zyklus, 28

ClO-Dimer-Zyklus, 28

cold load, 37

Corioliskraft, 20

DC-8, 35, 36, 65, 85, 94, 95

- Denitrifizierung, 27, 29
- Denoxifizierung, 27
- Dewar, 38
- diabatische Absinkrate, 111, 114, 115, 117, 119, 121, 145
- diabatisches Absinken, 103, 110, 112, 115, 121, 128, 129, 132, 135, 137, 138, 145, 147
- DIAL, 83, 84, 89, 93, 98, 144
- Diodenarraydetektor, 31
- Doppelseitenband, 32
- Dopplerverbreiterung, 49, 51
- Dopplerverschiebung, 49
- Druckverbreiterung, 35, 50, 51
- Druckverschiebung, 50
- Dryden, 65
- dynamische Korrektur, 123, 125, 129, 139
  
- EASOE, 29, 35
- ECMWF, 119, 129
- Effektive Linienverbreiterung, 50
- Elevationswinkel, 36
- ER-2, 66, 83, 88, 95, 115, 144
- ESRANGE, 63, 66, 94
  
- Falcon, 35, 59, 62, 66
- Faltung, 55, 89
- Flugdauer, 62, 65
- Flughöhe, 35, 65, 89, 149
- Fluorchlorkohlenwasserstoffe, 11, 25
- Frequenzbereich, 35, 41, 72, 144
- frontend, 36, 40
- FTIR, 87
  
- Gesamtfehler, 56
- Gesamtozon, 11, 26
- Gewichtsfunktionen, 53
- Glättung, 56, 95, 115, 116, 118, 121, 134, 137, 140, 145, 146

- Glättungsfehler, 55
- GOME, 113, 118, 129, 130
- Grenzeempfindlichkeit, 34
  
- Höhenauflösung, 121, 130, 134, 137, 140
- HALOE, 113
- Heizraten, 103, 112, 114, 118, 121, 132, 139, 145
- Hekla, 66
- Helligkeitstemperatur, 46
- Heterodynprinzip, 31
- heterogene Reaktionen, 27, 123
- Heterosphäre, 17
- HIMSPEC, 40, 59, 62, 70, 72, 98, 143
- Homosphäre, 17
- horizontale Auflösung, 85–87
- hot load, 37
  
- Impact-Näherung, 50
- in situ, 65, 88
- Integrationszeit, 34
- Ionosphäre, 18
- Isentropen, 20, 69, 116, 129, 131, 134, 135, 139, 145
  
- Kältepol, 65
- Katalysator, 25
- katalytische Reaktionen, 25, 26
- Kiruna, 62, 65, 95
- Kontinuum, 51
- Korrelation, 137–140, 145
  
- least square, 53
- Linienform, 47–50
- Linienstärke, 48
- Lokaloszillator, 31, 38
- Lorentzform, 50

- Mark IV, 83, 87, 94, 96, 98, 115, 118, 144  
Meßfehler, 53, 55  
Meßzeit, 39  
Meßzyklus, 37  
Mesopause, 18  
Mesosphäre, 18, 51  
Mischprozesse, 104, 108, 138  
Modellparameterfehler, 56
- NAT, 26, 60, 64  
Natürliche Linienverbreiterung, 48  
NCEP, 129  
Newton-Iteration, 54  
Nobelpreis, 25  
Nyquist-Theorem, 33
- oberes Seitenband, 32  
OLEX, 59  
Optimal Estimation, 53  
Ozon, 11, 18, 35, 144  
Ozonabbau, 22, 27, 28, 123, 128, 130, 134, 138, 140, 143  
Ozonchemie, 35  
Ozonloch, 11, 29  
Ozonschicht, 11, 26  
Ozonverlust, 25, 29, 63, 118, 123, 128, 130, 134, 136, 137, 139, 140, 145, 147
- passives Ozon, 132, 134, 136  
Photolyse, 25, 70, 77  
polarer Vortex, 20, 26, 60, 64, 103, 108, 114, 124, 128, 135, 139, 145  
potentielle Temperatur, 19, 77, 111, 114, 129, 131, 135, 140  
potentielle Wirbelstärke, 22, 60, 69, 77, 104, 107  
PSC, 26, 46, 60, 64, 123, 143
- Quasioptik, 37
- RAM, 83, 86, 89, 118, 121, 129

- Rauschleistung, 33  
Rayleigh-Jeans-Näherung, 33, 45  
RDF, 104, 106, 108  
Reservoirgas, 26, 27, 123, 125  
Rollwinkel, 37
- Sauerstoffzyklus, 23  
Seitenbandfilter, 38, 42  
SESAME, 29  
Signalband, 32  
SIS-Diode, 38  
Skalenhöhe, 19  
SLIMCAT, 103, 116–118, 129, 133, 136, 140, 145, 146  
Sonden, 83, 89, 93, 98, 134, 140, 144, 146  
Spiegelband, 32  
Spitzbergen, 84, 86, 89, 119  
Strahlungstransfer, 46, 52  
Stratopause, 18  
Stratosphäre, 17, 51  
STS, 27  
Submillimeterradiometrie, 31  
Systemrauschen, 34  
Systemrauschtemperatur, 34, 35
- Temperaturentwicklung, 60, 64  
Thermosphäre, 18  
THESEO, 29, 59, 143  
THESEO 2000/SOLVE, 30, 35, 42, 59, 63, 70, 72, 75, 82, 99, 104, 124, 125,  
140, 144  
Total-Power-Empfänger, 32  
Tracer, 76, 99, 103, 108, 114, 121, 139, 144  
Tracer-Tracer Korrelation, 104, 108, 138  
Tracereigenschaften, 73  
Transportbarriere, 138  
Tropopause, 17  
Troposphäre, 17, 51

UARS, 113

UKMO, 107, 113, 116, 129

unteres Seitenband, 32

van Vleck und Weisskopf Linienform, 50

vertikale Auflösung, 84–87, 116

Voigtform, 51

Volumenmischungsverhältnis, 45, 47, 128

Vortexrand, 69, 76, 80, 82, 104, 107, 137, 140, 145

Vorwärtsmodell, 52, 54

Wolken, 46

Y-Faktor, 34

Zwischenfrequenzkette, 39