

**Die Ozonverteilungen der Nordhemisphäre  
1997 - 2000 gemessen mit GOME:  
Einfluss von Dynamik und Chemie in der  
Stratosphäre**

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

vorgelegt von  
Dipl. Phys. Kai-Uwe Eichmann

Oktober 2001

E-Mail des Autors: [eichmann@uni-bremen.de](mailto:eichmann@uni-bremen.de)

Die vorliegende Arbeit ist die inhaltlich unveränderte Fassung einer Dissertation, die im Oktober 2001 dem Fachbereich Physik/Elektrotechnik der Universität Bremen vorgelegt und von Prof. Dr. J. P. Burrows sowie Prof. Dr. J. Bleck-Neuhaus begutachtet wurde. Das Promotionskolloquium fand am 17. Dezember 2001 statt.

*Für meine Großmutter Maria Eichmann.*



# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Einleitung</b>	15
1.1 Motivation	15
1.2 Ziele der Arbeit	20
1.3 Gliederung der Arbeit	22
<b>I Strahlung</b>	25
<b>Überblick zu Teil I: Strahlung</b>	26
<b>2 Das Satellitenspektrometer GOME</b>	27
2.1 Der europäische Fernerkundungssatellit ERS-2	28
2.2 Der instrumentelle Aufbau von GOME	29
<b>3 Strahlungstransport in der Atmosphäre</b>	37
3.1 Das Strahlungstransportmodell GOMETRAN	38
3.2 Atmosphärenphysikalische Bestandteile des Modells	40
3.2.1 Kontinuumsabsorptionen im UV/Sichtbaren	40
3.2.2 Rayleigh- und Raman-Streuung	41
3.2.3 Aerosole, Wolken und Erdoberfläche	43
3.3 Diskretisierung der Strahlungstransportgleichung	45
3.4 Gewichtsfunktionen	47
<b>4 GOME Inversionsalgorithmen</b>	51
4.1 Inversionstheorie	51
4.2 DOAS: Die Bestimmung von Ozon-Gesamtsäulen	54
4.3 FURM: Die Bestimmung von Ozonvertikalverteilungen	60
4.3.1 Probleme der Inversion	62
4.3.2 Modell- und Ziel-Parameter von FURM	66
4.3.3 Validation des FURM-Algorithmus	69

<b>II Atmosphäre</b>	71
<b>Überblick zu Teil II: Atmosphäre</b>	72
<b>5 Die Erdatmosphäre</b>	73
5.1 Die vertikale Struktur der Atmosphäre	74
5.1.1 Das allgemeine Temperaturprofil	76
5.1.2 Die potentielle Temperatur als Höhenkoordinate	79
5.1.3 Die potentielle Vorticity	80
5.1.4 Die Tropopause	82
5.2 Transportprozesse in der Atmosphäre	84
5.2.1 Die allgemeine planetare Zirkulation	86
5.2.2 Atmosphärische Wellen	90
5.2.3 Der polare Wirbel	95
<b>6 Das Trajektorienmodell TANGO</b>	103
6.1 Physikalische Grundlagen	104
6.2 Reverse Domain Filling	106
<b>7 FUDD: Ozonmittelwerte und Absinkraten</b>	109
7.1 Diabatische Prozesse	110
7.2 Eingabeparameter für die Berechnung von Heizraten	113
7.3 Fehlerquellen und Vergleiche	117
<b>III Ozon</b>	121
<b>Überblick zu Teil III: Ozon</b>	122
<b>8 Das Atmosphären gas Ozon</b>	123
8.1 Atmosphärenphysikalische Eigenschaften	123
8.2 Die Ozonchemie in der Gasphase	127
8.3 Die heterogene Ozonchemie	130
<b>9 Dynamik des Ozonfeldes</b>	135
9.1 Allgemeine Ozonverteilung	135
9.2 Einfluss der Tropopausenhöhe auf die Ozonsäule	143
9.3 Ozonminilöcher als transiente Ozonänderungen	147
9.4 Trends im Gesamtozon	160

INHALTSVERZEICHNIS	7
<b>10 Ozon in nordpolaren Breiten</b>	165
10.1 Die arktischen Winter/Frühjahrsperioden 1997-2000	168
10.1.1 Die kalte Stratosphären 1997 und 2000	172
10.1.2 Die warme Stratosphäre 1998 und 1999	185
10.2 Vergleich mit Ozonsonden-Messungen	191
10.3 Vergleiche mit dem Chemie-Transportmodell SLIMCAT	194
<b>IV Zusammenfassung und Ausblick</b>	199
<b>11 Zusammenfassung</b>	201
<b>12 Ausblick</b>	205
<b>Anhang</b>	209
<b>A Das Satellitenexperiment TOMS</b>	211
<b>B Meteorologische Datensätze</b>	213
B.1 Der UKMO Datensatz	213
B.2 Der ECMWF Datensatz	214
<b>C Glossar</b>	217
<b>D Akronyme</b>	241

## Abstract

Measurements of the stratospheric ozone over the Northern hemisphere for the winter/spring periods of 1997 to 2000 taken with the GOME spectrometer were used to derive chemical ozone depletion rates. Results from the ozone profile retrieval algorithm FURM were compared with a number of other profiling instruments. In-situ measurements from ozone sondes (Vortex averaging and Match method) and remote sensing measurements from RAM, ASUR, MLS and HALOE and model results from SLIMCAT were taken for comparison. All comparisons showed good agreement of the total chemical loss near the ozone maximum at 475 K potential temperature.

The period of measurements is dynamically and chemically very interesting, as there were two warm winters with low ozone depletion and two cold winters with very high ozone depletion. To discern the chemical depletion from dynamical influences, a model was developed to calculate vortex averaged diabatic descent rates using the radiative transfer model MIDRAD and the FURM ozone profiles. The permeability of the Arctic vortex was analysed by using the trajectory model TANGO in conjunction with a reverse domain filling algorithm, developed within the framework of this thesis.

The chemical ozone depletion at 475 K for the stratospheric cold winter/spring period in 1997 was found to be 1.6 ppmv with a depletion rate of 22 ppbv/d for a strong, long lasting vortex until beginning of May. The chemical depletion in 1998, a comparatively warm year, was narrowed to a period at the end of February with 0.5 ppmv and a rate of 8 ppbv/d. 1999 was quite warm and the vortex was very instable. A depletion of 0.3 ppmv was measured, but this is in part due to intrusion of air from outside the vortex. 2000 was the coldest year on record. The vortex was detected very early by GOME at the end of January. A chemical depletion of 1.8 ppmv (32 ppbv/d) until the beginning of April was found, where the vortex broke down. Very low ozone VMR that were about 0.5 ppmv lower than GOME were observed by vertically high resolution instruments like the ozone sondes at the end of March confined to a small layer below 475 K. Due to the moderate vertical resolution of the method of retrieving ozone profiles from UV/vis measurements, drastic changes in thin vertical layers can not be observed.

Dynamical features of the Northern stratosphere were examined like the

influence of the tropopause height on the total ozone column. A very interesting phenomenon in this regard is the ozone minihole, that forms when subtropical air is advected to midlatitudes. It can be shown that this leads to a lifting of the tropopause, which can be seen in meteorological data from UKMO and in height resolved ozone maps using FURM profiles. The uplifting of the tropopause causes a reduction in ozone in the column.

Ozone trends, calculated from the last twenty years of TOMS measurements show a strong decrease in Northern midlatitudes, especially in the first half of the year. Comparisons with GOME total ozone measurements show good agreement with TOMS. But differences occur in the second half of year, where GOME measures less ozone (about 15 DU) than TOMS.

# Liste der Veröffentlichungen

## Fachzeitschriften:

- K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, V. Rozanov und J.P. Burrows, GOME ozone profiles: A global validation with HALOE measurements, *Advances in Space Research*, 2000, akzeptiert.
- H. Bremer, M. von König, A. Kleinböhl, H. Küllmann, K. Künzi, K. Bramstedt, J.P. Burrows, K.-U. Eichmann und M. Weber, Ozone depletion observed by ASUR during the Arctic Winter 1999/2000, *J. Geophys. Res.*, 2001, akzeptiert.
- J. P. Burrows, M. Weber, M. Buchwitz, V. V. Rozanov, A. Ladstätter-Weißmayer, A. Richter, R. de Beek, R. Hoogen, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, and M. Eisinger, The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission Concept and First Scientific Results, *J. Atmos. Sci.*, **56**, pp. 151-175, 1999.
- J.P. Burrows, A. Richter, M. Weber, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, A. Ladstätter-Weissenmayer, F. Wittrock, M. Eisinger and L. Hild, Satellite observations of tropospheric and stratospheric gases, *Chemistry and Radiation Changes in the Ozone Layer*, Kluwer Academic, pp. 301-329, 2000.
- K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, M. Weber, V. V. Rozanov, R. Hoogen, and J. P. Burrows, O<sub>3</sub> profiles from GOME satellite data - II: Observations in the Arctic spring 1997 and 1998, *Physics and Chemistry of the Earth*, **24(5)**, pp. 453-457, 1999.
- K.-U. Eichmann, M. Weber, K. Bramstedt and J.P. Burrows, Ozone depletion in the NH winter/spring 1999/2000 as measured by GOME on ERS-2, *J. Geophys. Res.*, 2001, akzeptiert.
- R. Hoogen, V. Rozanov, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, R. de Beek, M. Buchwitz, and J. Burrows, Height-resolved ozone information from GOME data, *ESA Earth Observation Quarterly No. 58 (GOME Spe-*

- cial), pp. 9-10, 1998,  
<http://esapub.esrin.esa.it/eoq/eoq58.htm>.
- R. Hoogen, V. V. Rozanov, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, and J. P. Burrows, O<sub>3</sub> profiles from GOME satellite data - I: Comparison with ozonesonde measurements, *Physics and Chemistry of the Earth*, **24(5)**, pp. 453-457, 1999.
  - V. V. Rozanov, M. Buchwitz, K.-U. Eichmann, R. de Beek und J. P. Burrows, SCIATRAN - A new radiative transfer model for geophysical applications in the 240 – 2400 nm spectral region: The pseudo-spherical version, COSPAR, 2000, akzeptiert.
  - B.-M. Sinnhuber, M.P. Chipperfield, S. Davies, J.P. Burrows, K.-U. Eichmann, M. Weber, P. van der Gathen, M. Guirlet, G.A. Cahill, A.M. Lee und J.A. Pyle, Large loss of total ozone during the Arctic winter 1999/2000, *Geophys.Res.Let.*, **27(21)**, pp. 3473-3476, 2000.
  - M. Weber, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt und J.P. Burrows, GOME observations of the NH and SH ozone holes in 1996 and 1997, ESA Earth Observation Quarterly No. 58 (GOME Special), pp. 3-5, 1998,  
<http://esapub.esrin.esa.it/eoq/eoq58.htm>.
  - M. Weber, K.-U. Eichmann, F. Wittrock, K. Bramstedt, L. Hild, A. Richter, J.P. Burrows und R. Müller, The cold Arctic winter 1995/1996 as observed by the Global Ozone Monitoring Experiment GOME and HALOE: Tropospheric wave activity and chemical ozone loss, *Q.J.R.Meteorol.Soc.*, 2001, akzeptiert.

### **Konferenzbeiträge:**

- K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, V. Rozanov, R. Hoogen, R. de Beek, M. Buchwitz, T. Kurosu und J. P. Burrows, Ozone profiles from GOME satellite data - Part II: First results from the arctic winter campaign, Proc. 4th European Symposium on Polar stratospheric ozone, Schliersee, Germany, 22-26 September 1997, European Commission Air Pollution Research Report No. 66, pp. 189-192.
- K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, V. Rozanov, R. Hoogen und J. P. Burrows, Chemical ozone depletion during Arctic spring seasons 1996/97-1998/99 derived from northern hemispheric ozone profile distribution, Stratospheric Ozone 1999 - Proc. Fifth European Symposium

- on Stratospheric Ozone Research, Saint Jean de Luz, France, September 1999, EC Air Pollution Research Report No. 73, 417-420.
- K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, R. Hoogen, V. Rozanov, and J.P. Burrows, Ozone depletion in the Arctic spring calculated from GOME Ozone Profiles, European Symposium on Atmospheric Measurements from Space, Proc. ESAMS'99, ESA-WPP-161, 225-229, 1999.
  - J. P. Burrows, M. Weber, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, A. Richter, R. Hoogen, A. Ladstätter-Weißmayer und M. Buchwitz, GOME/ERS-2 total O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> measurements during Arctic spring 1996 and 1997, Proc. 4th European Symposium on Stratospheric Ozone Research, Schliersee, Germany, 22-26 September 1997, European Commission Air Pollution Research Report No. 66, pp. 419-422.
  - J.P. Burrows, J. Gleason, G. Labow, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt und M. Weber, An Overview of the Stratosphere 1995-1999 as measured by GOME, Stratospheric Ozone 1999 - Proc. Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone Research, Saint Jean de Luz, France, September 1999, EC Air Pollution Research Report No. 73, pp. 63-66.
  - J.P. Burrows, G. Kent, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt und M. Weber, A potential additional cause of lower stratospheric ozone loss at mid-latitudes, Stratospheric Ozone 1999 - Proc. Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone Research, Saint Jean de Luz, France, September 1999, EC Air Pollution Research Report No. 73, pp. 67-70.
  - K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, R. de Beek, R. Hoogen, M. Weber, V. Rozanov und J. P. Burrows, Ozone Profile Retrieval from GOME Satellite Data II: Validation and Applications, Proc. 3rd ERS Symposium, Florence, Italy, 14-21 March 1997, ESA-SP-414, pp. 755-758.
  - K.-U. Eichmann, M. Weber, K. Bramstedt, R. Hoogen, V. V. Rozanov, and J. P. Burrows, Ozone profile distributions in the Arctic from GOME satellite observations during spring 1997 and 1998, *Proc. SPIE*, **3495**, paper no. 41, 1998.
  - K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, M. Weber, R. Hoogen, V.V. Rozanov and J.P. Burrows, Structure of ozone mini-holes from GOME, European Symposium on Atmospheric Measurements from Space, ESA-WPP-161, pp. 231-236.
  - K.-U. Eichmann, M. Weber, K. Bramstedt, V.V. Rozanov and J.P. Burrows, The structure of ozone mini-holes from GOME satellite obser-

- vations, Stratospheric Ozone 1999 - Proc. Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone Research, Saint Jean de Luz, France, September 1999, EC Air Pollution Research Report No. 73, 483-486.
- R. Hoogen, V. Rozanov, R. de Beek, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, M. Buchwitz, T. Kurosu, and J. P. Burrows, Ozone profiles from GOME satellite data - Part I: Advances in retrieval algorithm development, Proc. 4th European Symposium on Polar stratospheric ozone, Schliersee, Germany, 22-26 September 1997, European Commission Air Pollution Research Report No. 66, pp. 677-680.
  - R. Hoogen, V. V. Rozanov, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, and J. P. Burrows, Validation of ozone profiles from GOME satellite data, *Proc. SPIE*, **3495**, paper no. 42, 1998.
  - M. Weber, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, J. P. Burrows, and B. Naukokkat, GOME total ozone in the Arctic winter/spring seasons 1995/96 - 1998/99, Stratospheric Ozone 1999 - Proc. Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone Research, Saint Jean de Luz, France, September 1999, EC Air Pollution Research Report No. 73, pp. 127-130.
  - M. Weber, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, A. Richter, R. Hoogen, V.V. Rozanov und J.P. Burrows, GOME/ERS-2 observations during Arctic spring 1996 and 1997, Proc. NASDA/EORC Arctic Ozone Data Workshop, (3.-5. Dezember 1997), Tokyo, pp. 70-74.
  - M. Weber, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, J.P. Burrows, A. Lee, B.-M. Sinnhuber, 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, Proc. Quadrennial Ozone Symp., Sapporo, 3-8 July 2000, p. 105-106, published by NASDA, Tokyo, Japan 2000.

**Berichte:**

- K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, M. Weber, V. Rozanov, R. DeBeek, R. Hoogen and J.P. Burrows, Interpretation von Ozon-Vertikalprofilen und deren Variationen in der nördlichen Hemisphäre unter Benutzung von GOME Satellitendaten, Abschlussbericht BMBF 01LO9607/1, Institut für Umweltphysik, 2000.
- Ricarda Hoogen, Vladimir Rozanov, Klaus Bramstedt, Kai-Uwe Eich-

mann, Mark Weber, John Burrows, GOME: Neue Auswertelgorithmen liefern Ozonprofile, Ozonbulletin des Deutschen Wetterdienstes Nr. 57, 23. September 1998.

- T. Wagner, D.W. Arlander, A. Richter, M. Weber, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, F. Wittrock, M. Wenig, J. P. Burrows, U. Platt, Rekord-Ozonverlust im arktischen Winter 1999/2000? Satellitendaten zeigen starke stratosphärische Chloraktivierung über der Arktis, Ozonbulletin des Deutschen Wetterdienstes Nr. 73, 4. Februar 2000.

# 1 Einleitung

»Im Namen der Toleranz sollten wir daher das Recht beanspruchen, die Intoleranz nicht zu tolerieren.«

Karl R. Popper

»Wir möchten, dass wir notwendig sind, dass unsere Existenz unvermeidbar und seit allen Zeiten beschlossen ist. Alle Religionen, fast alle Philosophen und zum Teil sogar die Wissenschaft zeugen von der unermüdlichen, heroischen Anstrengung der Menschheit, verzweifelt ihre eigene Zufälligkeit zu verleugnen.«

Jaques Monod

## 1.1 Motivation

Der Einfluss menschlichen Handelns auf Natur und Umwelt ist durch die agrarökonomische und industrielle Revolution und insbesondere durch die Zunahme der Erdbevölkerung zu einem globalen Problem geworden. Die andauernde Bevölkerungszunahme wird die Probleme, die anthropogene Prozesse in der Natur bewirken, im 21. Jahrhundert sehr wahrscheinlich weiter verstärken. Einerseits sind infolge von Industrialisierung und technischer Innovation neue Stoffe für den täglichen Gebrauch entwickelt worden, deren Umweltverträglichkeit nicht immer richtig eingeschätzt wurde, wie zum Beispiel bei den Fluorchlorkohlenwasserstoffen (FCKW). Andererseits ist durch Forschung und Entwicklung erst das Gerüst entstanden, auf dem globale Probleme erkannt werden können (»globales Dorf«). Sind Umweltverschmutzungen beispielsweise durch verunreinigte Böden in erster Linie ein regionales Problem, so sind Verschmutzungen der Luft durch anthropogene Emissionen aus globaler Sicht viel problematischer.

Die Bewegung von Luftmassen kennt keine nationalen Grenzen und ein

Austausch dieser findet vergleichsweise schnell statt. Viele der globalen Umweltveränderungen, die der Mensch verursacht hat, sind durch die Chemie der Atmosphäre indirekt hervorgerufen worden. Das nahezu exponentielle Wachstum der Weltbevölkerung, der wachsende Verbrauch von fossilen Brennstoffen und die damit verbundene Emission von Kohlenstoffprodukten haben die Balance zwischen physikalischen, chemischen und biologischen Prozessen nachhaltig gestört (Brasseur et al., 1999).

Die Atmosphäre ist somit infolge von anthropogenen Aktivitäten ein Sammelbecken für eine Fülle synthetischer Spurenstoffe geworden. Die Wirkung dieser Spurengase und Aerosole erstreckt sich durch dynamische Austauschprozesse in der Atmosphäre in kurzer Zeit auf alle Gebiete der Erde. So ist zum Beispiel die Luftverschmutzung, verursacht durch Verbrennungsprozesse vor allem der nördlichen Industrienationen, weltweit messbar.

Die Ursachen der Einbringung umweltschädlicher Gase in die Atmosphäre sind vielfältig. Sie umfassen Verbrennungsprozesse privater Haushalte und industrieller Komplexe, sowie die Biomassenverbrennung in tropischen und subtropischen Gebieten und die Verstärkung agrikulturner Praktiken.

Beispiele für globale Umweltprobleme sind die Änderung der globalen atmosphärischen Wärmebilanz durch Treibhausgase wie  $\text{CO}_2$  (*global warming*), die Erhöhung der Menge troposphärischer Oxidationsmittel, wie zum Beispiel Ozon, sowie die Zerstörung des stratosphärischen Ozons und die damit verbundene Änderung der Strahlungsbilanz in Atmosphäre und am Erdboden.

Eine schematische Darstellung der gegenwärtig wichtigsten atmosphärischen Bedrohungen ist in Abbildung 1.1 gegeben. Die drei Themenkomplexe stratosphärischer Ozonabbau, Änderung der troposphärischen Luftchemie sowie der Treibhauseffekt sind interagierende vom Menschen verursachte Probleme für die Natur. Insbesondere die Änderung in der stratosphärischen Zusammensetzung sind im Rahmen dieser Arbeit von Interesse. Die Abnahme der die Flora und Fauna schützenden Ozonschicht ist Thema der Arbeit.

Mit der Entdeckung von ungewöhnlich niedrigen Ozonkonzentrationen im Jahre 1985 (Farman et al., 1985) über der Antarktis im südhemisphärischen Frühjahr begann eine Ära von nun mehr als 15 Jahren intensiver

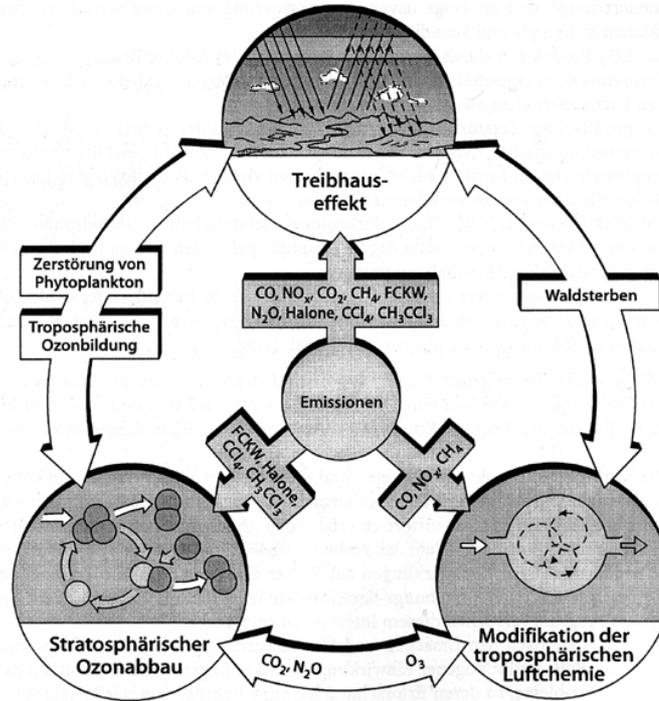


Abbildung 1.1: Bedrohungen der Atmosphäre durch anthropogene Emission von Spurengasen. Dargestellt sind die drei Themenkomplexe Ozonabbau in der Stratosphäre, Änderung der troposphärischen Luftchemie und Treibhauseffekt. Hervorgehoben werden diese atmosphärischen Phänomene durch Spurengase wie zum Beispiel die FCKWs, Halone, Kohlenmonoxid/-dioxid und Methan. Entnommen aus Warnecke (1997).

Stratosphärenforschung. Die Bedeutung von Ozon liegt in seiner Absorptionseigenschaft solarer Strahlung. Es bestimmt damit einerseits die thermische Struktur der Stratosphäre (Andrews et al., 1987), andererseits bildet es den ökologischen Rahmen für das Leben auf der Erdoberfläche (Solomon, 1999). Jede Abnahme von Ozon in der Atmosphäre bedeutet eine Zunahme ultravioletter Strahlung am Boden. Dies kann für die Gesundheit von Menschen, Tieren und Pflanzen negative Folgen haben (van der Leun et al., 1995).

Zur Bestimmung atmosphärischer Ozongehalte können die Absorptionseigenschaften von Ozon genutzt werden, welche im Ultravioletten auf kurzen Wellenlängenskalen stark variieren. Durch dieses spektrale Verhalten lässt sich Ozon im Sinne der Auswertung sehr gut von Absorptionsmerk-

malen anderer Spurengase separieren. Vom Boden aus nutzen die weltweit eingesetzten Brewer- und Dobson-Spektrometer die solare Strahlung, welche die gesamte Atmosphäre durchquert hat, zur Bestimmung der Ozongesamtsäule. Das DOAS-Verfahren (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*) wird beispielsweise für Spektrometer in Bremen (Richter, 1997) und Ny-Ålesund (Wittrock et al., 1996) zur Bestimmung des atmosphärischen Gehalts von Ozon und anderen Spurengasen verwendet.

Satelliteninstrumente können Ozon mit Hilfe radiometrischer Methoden auf globaler Ebene messen. Seit Ende der siebziger Jahre gibt es in Nadir messende Instrumente wie das *Total Ozone Mapping Spectrometer* TOMS (McPeters und Labow, 1996) und das *Solar Backscatter Ultraviolet Spectrometer* SBUV (Heath et al., 1975), beide an Bord des 1978 gestarteten NIMBUS-7 Satelliten, sowie den *TIROS Operational Vertical Sounder* TOVS (Planet et al., 1984). Insbesondere TOMS zeigte sich sehr erfolgreich in der Überwachung der Ozonschicht und wird deshalb für Langzeitmessungen immer wieder erneuert. Zur Zeit fliegt ein TOMS-Instrument an Bord des EARTH PROBE Satelliten, der 1996 gestartet wurde. Eine Übersicht dieser Fernerkundungsinstrumente, sowie deren Einsatzgebiete, findet sich bei Burrows (1999).

Im April 1995 ist mit dem *Global Ozone Monitoring Experiment* GOME ein weiteres Spektrometer zur Menge satellitengestützter Sensoren hinzugekommen. Intention des GOME-Spektrometers als Nadir messendes Gerät ist zuallererst die Bestimmung der Gesamtozonsäule auf globaler Basis. So tastet GOME innerhalb von 3 Tagen nahezu jeden Punkt auf der Erde ab.

Mit der Entwicklung des Algorithmus FURM (*Full Retrieval Model*) lassen sich jedoch die Spektren von GOME auch verwenden, um Ozonvertikalverteilungen zu bestimmen. Die Möglichkeit, auf globaler Ebene in die Ozonschicht hineinzublicken, ist ein sehr wertvoller Beitrag, den GOME leistet. Nicht zuletzt ist ja eine Familie von GOME-ähnlichen Instrumenten, wie SCIAMACHY (*Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHartographY*) und GOME-2 in Vorbereitung. Das Know-How, das jetzt mit FURM erworben wird, kann dann für diese Instrumente weiterverwendet und perfektioniert werden.

Zur Bestimmung von Ozonhöhenverteilungen können in situ Methoden wie Ballonsondenaufstiege verwendet werden, die eine hohe vertikale Auflösung besitzen. Mit aktiven optischen Systemen wie dem LIDAR (*Light*

*Detection and Ranging*) kann ebenfalls ein Höhenprofil abgeleitet werden. Passive in Limb beziehungsweise in Okkultation messende, satellitengestützte Experimente wie das *Stratospheric Aerosol and Gas Experiment SAGE II*<sup>1</sup> (Chu et al., 1989), der *Microwave Limb Sounder MLS*<sup>2</sup> (Barath et al., 1993) oder das *Halogen Occultations Experiment HALOE*<sup>3</sup> (Russell et al., 1993) können Höhenverteilungen von Ozon bestimmen und lieferten wichtige Beiträge zum Stand der Ozonforschung.

In der Atmosphäre finden die relevanten chemischen Prozesse, welche Einfluss auf den Ozongehalt haben, in unterschiedlichen Höhen statt. Die ozonzerstörende Gasphasenchemie durch katalytische Prozesse geschieht vor allem in der oberen Stratosphäre. Langzeitmessungen zeigen eine maximale Abnahme der Ozonkonzentration von  $7,4 \pm 1$  %/Dekade in 40 km Höhe (World Meteorological Organization (WMO), 1999). Anhand von photochemischen Modellen kann gezeigt werden, dass dies auf eine Anreicherung von Chlorverbindungen anthropogenen Ursprungs in der Atmosphäre und dem damit verbundenen katalytischen Ozonabbau über das ganze Jahr zurückzuführen ist. Die heterogene Chemie an polaren Stratosphärenwolken, die zu dem bekannten Ozonloch in der Antarktis im September und Oktober führt und die auch in der Arktis zu einem starkem Ozonabbau im Winter/Frühjahr führen kann, ist hingegen ein Phänomen der unteren Stratosphäre zwischen etwa 16 und 24 km Höhe.

In den letzten Jahrzehnten ist ein Rückgang der stratosphärischen Temperaturen beobachtet worden. Dieser Abkühlungstrend der Stratosphäre von etwa 0,75 K/Dekade ist einerseits auf den Anstieg von Treibhausgasen wie CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, FCKW und Wasserdampf in der Atmosphäre zurückzuführen, andererseits auch auf den Rückgang von Ozon in der Stratosphäre (World Meteorological Organization (WMO), 1999). Stratosphärische Änderungen im Ozon haben deshalb auch Auswirkungen auf das Klima in der Atmosphäre.

In Höhen von etwa 20 km, also knapp unterhalb seines Maximums hat Ozon eine sehr hohe Lebensdauer im Bereich von Wochen bis Monaten und kann deshalb als Tracer zur Bestimmung dynamischer Phänomene, insbe-

---

1 SAGE II startete 1984 an Bord des *Earth Radiation Budget Satellite*. (ERBS)

2 MLS startete 1991 an Bord des *Upper Atmosphere Research Satellite* (UARS)

3 ebenfalls auf UARS

sondere auf Zeitskalen weniger Wochen, verwendet werden. Das Wissen um die vertikale Verteilung von Ozon ist aufgrund der stark höhenabhängigen Ozonchemie (Solomon, 1999) also von großer Bedeutung. Insbesondere braucht man Langzeitmessungen, um den Trend im Ozonabbau, der bisher in Höhen zwischen 10 und 50 km gemessen wurde, verifizieren und verfolgen zu können. Durch den prognostizierten Rückgang des stratosphärischen Chlorgehalts wird eine Umkehr des Ozontrends erwartet. Auch dieses Verhalten muss höhenaufgelöst betrachtet werden. Vorallem für den Bereich zwischen oberer Troposphäre und unterer Stratosphäre (UT/LS: *upper troposphere/lower stratosphere*) stehen gegenwärtig in mittleren Breiten keine ausreichenden Datensätze zur Verfügung (World Meteorological Organization (WMO), 1999).

Für diese Fragestellungen können satellitengestützte Instrumente wie die Spektrometer GOME und das 2002 an Bord von ENVISAT (*Environmental Satellite*) startende SCIAMACHY wertvolle Beiträge für die wissenschaftliche Erforschung leisten, wenn neben der Gesamtozonsäule auch der Ozongehalt in verschiedenen Höhen abgeleitet werden kann.

## 1.2 Ziele der Arbeit

Nachdem der FURM-Algorithmus zur Ableitung von Ozonprofilen seit mehr als fünf Jahren am Institut für Umweltphysik Bremen entwickelt und inzwischen ausgiebig validiert wurde, stand eine Anwendung der Ozonprofilauswertung im Hinblick auf atmosphärenphysikalische Fragestellungen wie dem chemisch bedingten Ozonabbau im polaren Vortex noch aus. In Abbildung 1.2 ist ein Beispiel für die Möglichkeiten der Kombination von GOME-Messungen mit höhenauflösenden Inversionsalgorithmen wie FURM dargestellt. Sie zeigt einen Blick in die Höhenabschnitte von 15–23 km und 23–30 km. Die Ozonmenge ist in den einzelnen Schichten determiniert durch dynamische und chemische Prozesse. Man sieht niedrige Ozonsäulendichten, gemessen in Dobson-Einheiten [DU]<sup>4</sup>, im Inneren des

---

<sup>4</sup> *Dobson Units*: Maß für die Dicke der Ozonschicht. 300 DU entsprechen einer 3 mm Ozonsäule unter Standardbedingungen von Druck und Temperatur.

polaren Vortex aufgrund heterogener chemischer Prozesse, aber auch an der Ostküste Nordamerikas als Folge dynamischer Vorgänge.

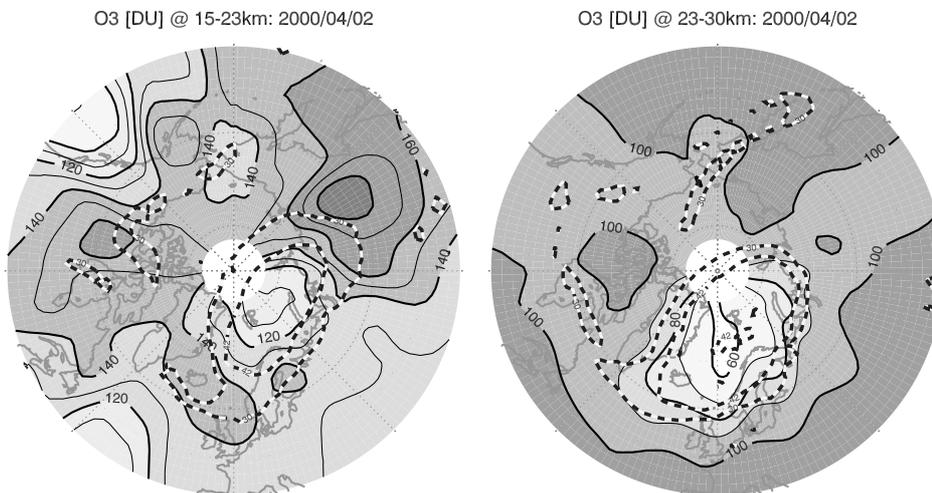


Abbildung 1.2: Ozonteilsäulen in der Nordhemisphäre [DU] vom 2. April 2000 für die untere Stratosphäre 15–23 km (oben) und die mittlere Stratosphäre 23–30 km (unten). Die stereographische Projektion reicht von  $40^{\circ}\text{N}$  zum Pol, der Greenwich Meridian liegt unten. Konturlinien sind alle 10 DU aufgetragen. Hohe Ozonwerte sind dunkel, niedrige hell. Die schwarz-weiße Linie markiert das Randgebiet des polaren Vortex anhand der potentiellen Vorticity von 30 und 42 PVU in 475 K (oben) und 675 K (unten) Höhe.

Mit Hilfe von Visualisierungstools können die für diese Arbeit berechneten Ozonprofile in semiglobale Karten umgerechnet werden. Die globale, tägliche Bereitstellung von Daten ist eine der Stärken der GOME-Messgeometrie, wie sie nur wenige andere Instrumente zur Zeit ermöglichen.

Der Beitrag von GOME-Messungen in Verbindung mit dem Auswertalgorithmus FURM zur Bestimmung dynamischer und chemischer Ozonänderungen soll im Rahmen dieser Arbeit untersucht werden. Dabei werden meteorologische Datensätze von Temperatur, Wind und potentieller Vorticity zur Berechnung von Vortexausdehnung, Vortexaustauschvorgängen und Absinken von Luftmassen verwendet. Die Höhenauflösung der Auswertmethode spielt in diesem Zusammenhang eine wichtige Rolle. Bei einer Auflösung von mehr als 6 km können nicht alle Prozesse, die in schmalen Höhenschichten ablaufen, erkannt und unterschieden werden.

Für diese Arbeit wurde Datenmaterial von 5 Jahren GOME-Messung-

en verwendet. Dafür sind unter anderem für die Winter/Frühjahrsperioden von 1997 bis 2000 Ozonprofile in den nördlichen Breiten oberhalb  $40^{\circ}\text{N}$  berechnet worden. Dieser Datensatz wird zur Berechnung von höhenabhängigen Ozongehalten im nordpolaren Vortex verwendet. Weiterhin werden die eine Rolle in der Ozonbilanz spielenden dynamischen Effekte, wie das diabatische Absinken von Luftmassen und der Austausch von Luftmassen über den Vortexrand, ermittelt. Zu diesem Zweck wurden im Rahmen dieser Arbeit sowohl Algorithmen zur Berechnung von diabatischen Absinkvorgängen (FUDD) als auch zur Bestimmung von Luftmassentrajektorien (TANGO) und Austauschvorgängen über den Vortexrand entwickelt. Unter Einbindung dieser Informationen kann der chemische Ozonverlust in abgeschlossenen Luftmassen wie dem polaren Vortex abgeleitet werden. Die Ergebnisse aus den FURM-Berechnungen werden mit anderen Messverfahren verglichen, um eine Einschätzung der realen Qualität der Auswertemethode zu erhalten.

Ein Beispiel für einen dynamischen Effekt, der zu transienten Ozonänderungen in der unteren Stratosphäre führt, ist das Ozonminiloch. Dieses Phänomen soll mit Hilfe atmosphärenphysikalischer Parameter wie Temperatur, potentieller Vorticity und Windfeldern untersucht werden. GOME-Ozonvertikalprofile werden verwendet, um ein dreidimensionales Bild von einem Miniloch zu erhalten.

Weil auch der Gesamtzondatensatz von GOME aus der operationellen Auswertung für diese Arbeit vorlag, wurde der aus TOMS-Daten abgeleitete Ozontrend für verschiedene Breitengradgürtel um die GOME-Daten ergänzt und so ein einfacher, informativer Vergleich der beiden Instrumente ermöglicht. Dies geschieht auch in Hinblick auf die Problematik in der Homogenisierung von Langzeitmessungen verschiedener Instrumente, insbesondere bei der Trendumkehr.

### 1.3 Gliederung der Arbeit

Die Arbeit gliedert sich in drei Teile und einen Anhang. Der Anhang enthält ein Glossar, ein Abkürzungsverzeichnis, ein Verzeichnis mathematischer Symbole, sowie eine Beschreibung des TOMS Instruments.

Teil I *Strahlung* führt in Grundlagen von Instrument und Auswertalgo-

rithmen ein. In Kapitel 2 wird das Instrument GOME zur Messung von Erdradianz- sowie Sonnenspektren GOME an Bord des ERS-2 Satelliten vorgestellt. In Kapitel 3 wird das am IUP Bremen entwickelte Strahlungstransportmodell GOMETRAN beschrieben, welches als Vorwärtsmodell für FURM und zur Bestimmung von Airmassfaktoren für DOAS dient. Kapitel 4 behandelt den Inversionsalgorithmus FURM und gibt eine kurze Einführung in das DOAS-Verfahren, mit dem die operationelle Auswertung des Gesamt ozons (Level 2 Version 2.7) durchgeführt wird.

Der Teil II *Atmosphäre* geht auf die atmosphärischen Bedingungen dynamischer Art ein und stellt die im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Modelle von. In Kapitel 5 wird die Atmosphäre im Hinblick auf physikalische Parameter wie Temperatur, potentieller Temperatur, potentielle Vorticity und Tropopause beschrieben. Die grundlegenden physikalischen Gleichungen werden vorgestellt und die vertikale Struktur der Atmosphäre beschrieben. Weiterhin wird in Bewegungsformen wie die generelle atmosphärische Zirkulation sowie Wellenbewegungen in der Stratosphäre eingeführt. In Kapitel 7 wird das für diese Arbeit entwickelte Programmpaket FUDD beschrieben, mit dem mittlere Größen aus den FURM-Ozonprofilen sowie anderen atmosphärenphysikalischen Parametern bestimmt werden können. Hauptsächlich berechnet FUDD mit Hilfe eines Strahlungstransportmodells diabatische Absinkraten in der winterlichen Stratosphäre, um so dynamische Effekte bei den Ozonverlusten abzutrennen und damit die chemisch bedingten Ozonverluste zu bestimmen. Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Trajektorienmodell TANGO, mit Hilfe dessen RDF-Rechnungen (Reverse Domain Filling) durchgeführt wurden, wird in Kapitel 6 beschrieben.

Teil III *Ozon* stellt die Ergebnisse der Arbeit bezüglich der GOME-Ozonmessungen für die nördliche Hemisphäre dar. Das atmosphärische Spurengas Ozon und die damit verbundene stratosphärische Chemie wird in Kapitel 8 vorgestellt. Die allgemeinen dynamischen Prozesse, die die Ozonverteilung bedingen werden in Kapitel 9 beschrieben. Am Beispiel eines Ozonminilochs werden die meteorologischen Parameter, die davon beeinflusst sind, untersucht. Ferner wird der allgemeine Rückgang von Ozon, wie er in den letzten 20 Jahren durch TOMS-Messungen bestimmt wurde, beschrieben und um den GOME-Datensatz ergänzt. In Kapitel 10 werden die Ergebnisse aus den FURM-Berechnungen insbesondere in Bezug auf den

Ozonabbau im polaren Vortex beschrieben. Chemische Abbauraten in der unteren Stratosphäre und Vergleiche mit Ozonsonden und dem chemischen 3D-Transportmodell SLIMCAT werden vorgestellt, so dass eine Beurteilung der Stärken und Schwächen des FURM-Algorithmus für diese Art der Anwendung möglich ist.

Im Teil IV folgt eine Zusammenfassung der erzielten Ergebnisse. Ein Ausblick auf mögliche Verbesserungen und die Erweiterung der Einsatzmöglichkeiten des FURM-Algorithmus wird gegeben.

**Teil I**

# **Strahlung**

# Überblick zu Teil I: Strahlung

In diesem Abschnitt wird in die grundlegende Aspekte der Arbeit, die das Instrument GOME, den Strahlungstransport und die Auswertung betreffen, eingeführt.

In *Kapitel 2* wird das Satellitenspektrometer GOME beschrieben, mit dem Absorptionsspektren der Erdatmosphäre sowie die solaren Spektren gemessen wurden. Informationen zum Trägersatelliten ERS-2, sowie zum instrumentellen Aufbau von GOME werden dargestellt.

*Kapitel 3* geht auf den Strahlungstransport in der Erdatmosphäre ein. Das verwendete numerische Verfahren zur Lösung der Strahlungstransportgleichung, das Strahlungstransportmodell GOMETRAN, wird vorgestellt. Die wichtigen Modellparameter werden erläutert und das Verfahren der finiten Differenzen kurz vorgestellt. Zum Ende wird auf die für das Retrieval wichtigen Gewichtsfunktionen eingegangen.

In *Kapitel 4* wird die Inversionstheorie physikalischer Parameter aus den Messdaten erläutert. Das DOAS-Verfahren zur Ableitung atmosphärischer Gesamtsäuleninformationen von Spurengasen aus GOME-Messungen wird erläutert. Ebenfalls wird der Ansatz zur Messdateninversion FURM mit dem das Retrieval von höhenaufgelösten Ozonkonzentrationen durchgeführt wird, diskutiert. Dazu werden alle Ein- und Ausgabeparameter beschrieben und Ergebnisse der durchgeführten Validationen mit anderen Messinstrumenten vorgestellt.

## 2 Das Satellitenspektrometer GOME

Während der Planungsphase zum Bau des *European Remote Sensing Satellite* ERS-2 gegen Ende der 80er Jahre wurde von wissenschaftlicher Seite die Notwendigkeit festgestellt, dem Satelliten ein Instrument hinzuzufügen, mit dem wissenschaftliche Studien zu den seinerzeit neuen Themen wie dem gerade entdeckten drastischen Ozonabbau über der Antarktis (Farman et al., 1985) oder dem Klimatrend infolge des Treibhauseffektes gemacht werden können. ERS-2 ist eine nahezu baugleiche Version des erfolgreich operierenden ERS-1. Ein weiteres Instrument sollte unter folgenden Einschränkungen ausgewählt und in das strukturelle Design von ERS-2 integriert werden: keine anderen Aspekte der ERS-2 Mission durften beeinträchtigt werden, Restriktionen in den Bereichen Größe, Gewicht und elektrische Versorgung des Instruments waren zu beachten und die finanzielle Unterstützung seitens der ESA für die Datenprozessierung wurde nicht gestattet.

Das daraufhin ausgewählte Instrument war das *Global Ozone Monitoring Experiment* GOME, das auf einem Vorschlag von J.P. Burrows und P. Crutzen für ein Spektrometer namens »SCIAMINI« basierte. GOME ist ein Spektrometer, das speziell zur globalen Bestimmung von Spurengassäulendichten in der Erdatmosphäre gebaut wurde (Burrows et al., 1999b). GOME ist eine abgespeckte Version von SCIAMACHY (Bovensmann et al., 1999), welches inzwischen Bestandteil der ENVISAT Mission ist, die am 1. März 2002 gestartet ist.

## 2.1 Der europäische Fernerkundungssatellit ERS-2

Der ERS-2 Satellit startete am 21. April 1995 an Bord einer Ariane 4 von Kourou in Frz. Guayana, knapp vier Jahre nach dem Start von ERS-1 (17. Juli 1991), und wurde ebenfalls in eine polare Umlaufbahn gebracht. Die Missionsziele der ERS-Reihe sind die Erforschung von Atmosphäre sowie Erd- und Seeoberfläche insbesondere im Bereich der physikalischen Ozeanographie, der polaren Wissenschaften und der Klimaforschung. Der Nachfolger von ERS-1 sollte die Datenkontinuität über größere Zeiträume gewährleisten. Fünf Instrumente sind auf beiden Satelliten nahezu baugleich eingesetzt worden. Folgende Instrumente sind auf ERS-1 und ERS-2 zu finden: Das *Active Microwave Instrument* AMI, das *Radar Altimeter* RA, der *Along-Track Scanning Radiometer and Microwave Sounder* ATSR-M, das *Precise Range and Range-rate Equipment* PRARE und der *Laser Retro-Reflector* LRR. Das Spektrometer GOME ist hinzugekommen, um dem Bedarf an Messungen chemisch bedeutsamer Spurengase in der Atmosphäre Rechnung zu tragen.

ERS-2 fliegt in einem sonnen-synchronen, polaren, nahezu zirkularen Orbit. Die Orbitparameter sind so gewählt, dass die Überflugpunkte am Boden sich alle 35 Tage wiederholen. Die hohe Inklination ( $98,5^\circ$ ) ist gewählt worden, um den Orbit des Satelliten in einer gleichbleibenden Position relativ zur Sonne zu halten. Der Äquator wird jeweils um 10:30 Lokalzeit im absteigenden Knoten der Bahn (von Norden kommend) erreicht. Die mittlere Höhe eines Orbits liegt bei 785 km. Daraus ergibt sich eine Orbitdauer von ungefähr 100 Minuten und eine Geschwindigkeit des Satelliten-Nadirpunktes am Boden von 7 km/s. ERS-2 ist ein dreiachs-stabilsierter, in Erdrichtung blickender Satellit, bei dem die Nadir-Achse (z-Achse) so gesteuert wird, dass sie parallel zu einem an Bord gespeicherten Referenzellipsoidmodell der Erde liegt. ERS-2 fliegt im *Yaw Steering Mode*, das heißt der Satellit wird fortwährend um die z-Achse gedreht, um Doppler-Shift Effekte durch die Rotationsgeschwindigkeit der Erde zu kompensieren (ESA, 1995).

## 2.2 Der instrumentelle Aufbau von GOME

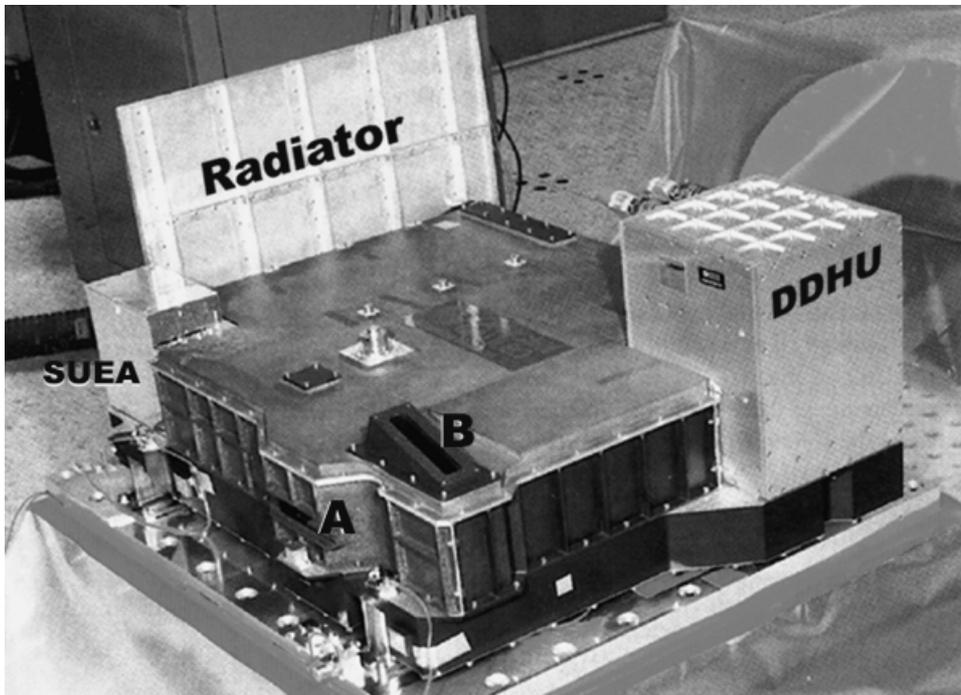


Abbildung 2.1: Außenansicht des GOME-Spektrometers. Zu sehen sind der Nadir-Port (A), der Sonnen-Port (B), die *Detection and Data Handling Unit* (DDHU), sowie die *Scan Unit Electrical Assembly* (SUEA). Photo entnommen aus ESA-Dokumentation (1995) und modifiziert.

Das Instrument GOME ist ein Spektrometer, mit dem das an der Erdoberfläche reflektierte und in der Atmosphäre gestreute Sonnenlicht aufgefangen, in seine spektralen Bestandteile zwischen 240 und 790 nm Wellenlänge aufgespalten und dann vermessen wird. Abbildung 2.1, entnommen aus dem *GOME User's Manual* (ESA, 1995), zeigt das GOME-Instrument im geschlossenen Zustand. Zu sehen sind der Radiator zur Wärmeabgabe, die *Detection and Data Handling Unit*, in der alle elektrischen Verbindungen zum ERS-2 sowie die Ein- und Ausgabeelemente von GOME untergebracht sind, und die *Scan Unit Electrical Assembly*, welche den Scanspiegel kontrolliert.

Im Folgenden wird eine kurze Einführung in die Funktionsweise des GOME-Spektrometers gegeben. Das Licht fällt über einen Scan-Spiegel

(*Scan Mirror*) in das Gerät ein und wird über zwei Teleskopspiegel auf einen Spektrometerspalt ( $10,15 \text{ mm} \times 0,1 \text{ mm}$ ) fokussiert. Daraus berechnet sich ein instantanes Blickfeld von  $2,9^\circ \times 0,143^\circ$  (in Flugrichtung  $\times$  senkrecht zur Flugrichtung). Abbildung 2.1A zeigt den Nadir-Port, über den das reflektierte Licht der Erde einfällt. Die Abmessungen des Spalt und die Flughöhe bewirken eine Ausdehnung des Blickfeldes von  $40 \text{ km} \times 2 \text{ km}$  am Erdboden. Der Scan-Spiegel bewegt sich im normalen Messmodus innerhalb eines Winkelbereichs von  $\pm 30^\circ$  senkrecht zur Flugrichtung.

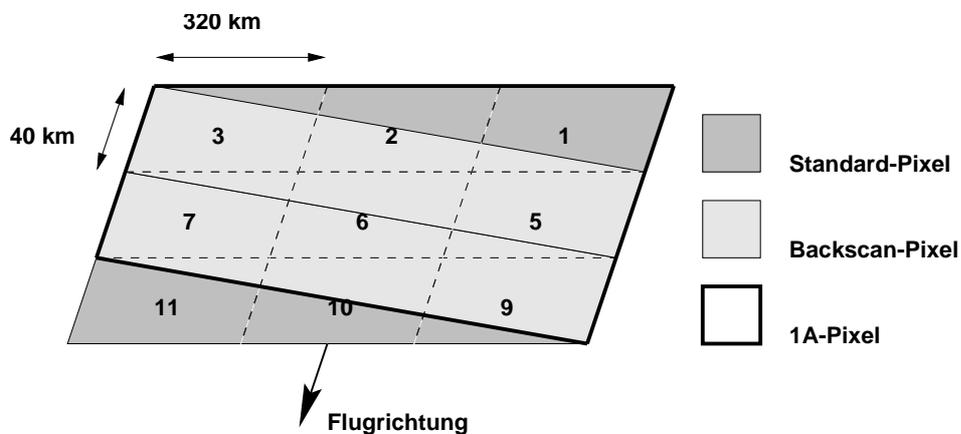


Abbildung 2.2: Die Scan-Abfolge des GOME-Instrumentes am Beispiel der Pixelgrößen am Boden für den Standard-Scan, den Back-Scan und den Kanal-1a-Scan. Die Abbildung ist aus der Dissertation von Hoogen (1998) entnommen.

Dabei werden 3 Vorwärtsscans mit jeweils 1,5 Sekunden Integrationszeit im Winkelbereich von  $-30^\circ$  bis  $-10^\circ$  Ost,  $-10^\circ$  bis  $+10^\circ$  im Nadir und  $+10^\circ$  bis  $+30^\circ$  West durchgeführt und ein Scan (1,5 Sekunden) zur Rückführung des Scanspiegels von  $+30^\circ$  nach  $-30^\circ$ . Jeder Vorwärtsscan entspricht also einer Ausdehnung des Blickfeldes, aus dem Licht empfangen aufintegriert wird, von  $40 \times 320 \text{ km}^2$  (Backscan:  $40 \times 960 \text{ km}^2$ ). Nach 6 Sekunden ist der Spiegel in seiner Startposition, der Satellit hat sich in dieser Zeit etwa 42 km weiterbewegt. Die Streifen der Messungen von einem Scanzyklus zum nächsten schließen also unmittelbar aneinander an. Messgeometrie sowie Lage und Form der Pixel am Boden sind in Abbildung 2.2 für zwei Scanzyklen schematisch dargestellt.

Im Instrument wird der Lichtstrahl über einen Parabolspiegel kollimiert und fällt dann auf ein Prisma (*Predisperser Prism*), wo eine Voraufspal-

tung nach den Wellenlängen stattfindet. Der spektral aufgeweitete Strahl trifft auf ein weiteres Prisma (*Channel Separator Prism*), an dem die Lichtstrahlen für die kurzwelligen Kanäle abgetrennt werden. Ein Teilstrahl wird am Prisma reflektiert (Kanal 2), der andere durchläuft das Prisma (Kanal 1). Die langwelligen Strahlen gehen am Kanalteiler-Prisma vorbei, werden über eine Blende geleitet und an einem dichroischen Filter in die Kanäle 3 und 4 aufgespalten. Auf vier Beugungsgittern wird das Licht der einzelnen Wellenlängenbereiche weiter aufgespalten (Doppelmonochromator) und von vier Siliziumdetektoren simultan gemessen.

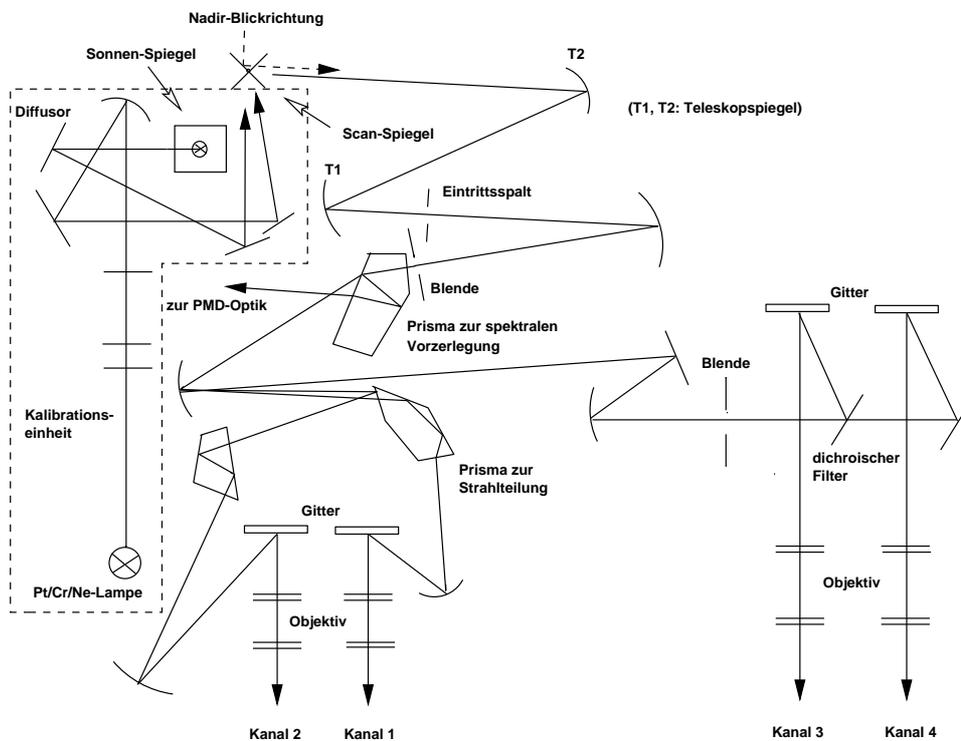


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung des optischen Aufbaus des GOME-Instrumentes. Die Lichtwege der vier Kanäle für Nadir-Messungen sowie für Kalibrations-Messungen sind dargestellt. Die Abbildung ist entnommen aus Weber et al. (1998).

Jeder Detektor ist ein aktiv gekühltes Diodenzeilenarray, bestehend aus 1024 Pixeln der Größe  $25\ \mu\text{m} \times 2,5\ \text{mm}$  (in Dispersionsrichtung  $\times$  in Spalttrichtung) zur Messung der Wellenlängenintensität (*radiance*). Die Detektoren werden über Peltier-Elemente auf 235 K abgekühlt, um den Dunkel-

strom zu verringern und das Signal-zu-Rausch Verhältnis zu verbessern. Das Auslesen der aufintegrierten Lichtintensität geschieht von Zeile zu Zeile innerhalb von  $91,6\mu\text{s}$ , insgesamt dauert das Auslesen einer Diodenzeile also  $93,75\text{ms}$ . Der instrumentelle Aufbau im Hinblick auf die Lichtwege der Nadir- und der Kalibrationsmessungen im Spektrometer sind in Abbildung 2.3 dargestellt.

Kanal	Wellenlänge [nm]	Auflösung [nm]	$T_I$ [s]	SNR [-]
1A:	238-307 (283)	0.2	12	10-434
1B:	(283) 307-314	0.2	1.5	434-841
2:	314-404	0.17	1.5	849-5100
3:	394-611	0.29	1.5	3500-4200
4:	578-794	0.33	1.5	3239-4214

Tabelle 2.1: Kanal, Spektralbereich des Kanals [nm], spektrale Auflösung [nm] eines Detektor-Pixels, Integrationszeit  $T_I$  [s] und Signal-zu-Rausch Verhältnis SNR [-] der GOME-Diodenzeilendetektoren.

Die Kanäle gliedern sich bezüglich der Wellenlängenbereiche wie in Tabelle 2.1 dargestellt. Kanal 1 ist in zwei virtuelle Kanäle mit unterschiedlichen Integrationszeiten aufgeteilt worden, weil das Signal um die Kanalgrenze von 307 nm eine starke Dynamik infolge der abnehmenden Ozonabsorption in der Huggins-Bande aufweist. Seit dem 6. Juli 1998 ist die virtuelle Grenze zwischen Kanal 1A und 1B in den kürzeren Wellenlängenbereich nach 283 nm verschoben worden. Damit konnte die Integrationszeit für Messungen über 283 nm verkürzt werden, wodurch die räumliche Auflösung in diesem Teil des Spektrums verbessert wurde. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis wird für diesen Teil des Spektrums damit jedoch verschlechtert.

Vor dem 12. März 1996 war die nominelle Integrationszeit der Kanäle 1b bis 4 von 1,5 s auf 0,375 s reduziert, um eine Sättigung der Detektoren bei hohen Reflektivitäten zum Beispiel durch Wolken zu vermeiden. Dadurch wurde nur ein Viertel der Bodenszene gesehen und es gab Datenlücken von 240 km zwischen den einzelnen Vorwärts-Scans. Ein Co-Adding Softwarepatch wurde deshalb am Instrument eingespielt, wodurch die ganze Bodenszene gesehen werden kann, ohne dass die Detektoren saturiert werden.

Das gemessene Licht kann in Abhängigkeit von Wellenlänge, Messwinkel und Streueigenschaften der Atmosphäre polarisiert sein. Um Kenntnis

über den Polarisationszustand des einfallenden Lichts zu erlangen und um Effekte, die durch die Polarisations sensitivität der GOME-Optik hervorgerufen werden, korrigieren zu können, verfügt das Instrument über drei breitbandige Polarisationsmessgeräte (Silikonphotodioden). Licht, das parallel zum Eingangsspalt polarisiert ist, wird im Predisperser-Prisma zweimal reflektiert und zu den PMDs geleitet, die in den Wellenlängenbereichen von 295–397 nm (blau), 397–580 nm (grün) und 580–745 nm (rot) für die Integrationszeit von 1,5 s sechszehnmals die Intensität messen. Die PMDs eignen sich damit auch dazu, Aussagen über die Inhomogenität innerhalb eines Pixels zu machen und zum Beispiel den Wolkenbedeckungsgrad in einem GOME-Pixel zu ermitteln.

Jedes Detektorpixel ist einer bestimmten Wellenlänge zugeordnet, die vor dem Start durch spektrale Kalibration festgestellt wurde. Im Laufe der Flugphase können sich diese Zuordnungen jedoch leicht ändern, weil die Temperatur des Predisperser-Prismas im Orbit um bis zu  $\pm 0,5$  K variieren kann und sich somit die Austrittswinkel der Strahlung verändern. Im Spektrometer befindet sich in der Kalibrationseinheit eine Hohlkathoden-Gasentladungslampe, gefüllt mit Neon und einer Pt/Cr Elektrode zur spektralen Kalibrierung im Orbit. Die Kalibrationslampe deckt über viele atomare Emissionslinien das GOME-Messspektrum ab, so dass eine Wellenlängenidentifikation für große Teile des Spektrums gewährleistet ist.

Zur radiometrischen Kalibration wird die Sonne als relativ stabile Strahlungsquelle herangezogen. Über einen Diffuser wird das Sonnenlicht auf den Scanspiegel eingekoppelt. Abbildung 2.1B zeigt den Eingang, durch den die Sonne beobachtet wird. GOME misst kontinuierlich die irdischen Rückstreuungsspektren (Radianz) auf der Tagseite eines Orbits und einmal täglich ein Sonnenspektrum (Irradianz). Die Radianz ist physikalisch gesehen eine Strahldichte [Photonen  $\text{nm}^{-1} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ], die Irradianz eine Strahlungsflussdichte [Photonen  $\text{nm}^{-1} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ].

In Abbildung 2.4 sind zwei Spektren gezeigt, die mit GOME bei verschiedenen Bewölkungsbedingungen aufgenommen wurden. Dargestellt ist die sonnennormierte Strahlung, das ist die Erdradianz  $I$  geteilt durch die Sonnenirradiation  $F$ , hier gewichtet durch den Cosinus des Sonnenzenitwinkels  $\mu$  und normiert auf  $\pi$ . Man erkennt die Absorptionsbanden von Ozon und Linienabsorptionen anderer Gase wie Sauerstoff und Wasserdampf. Die

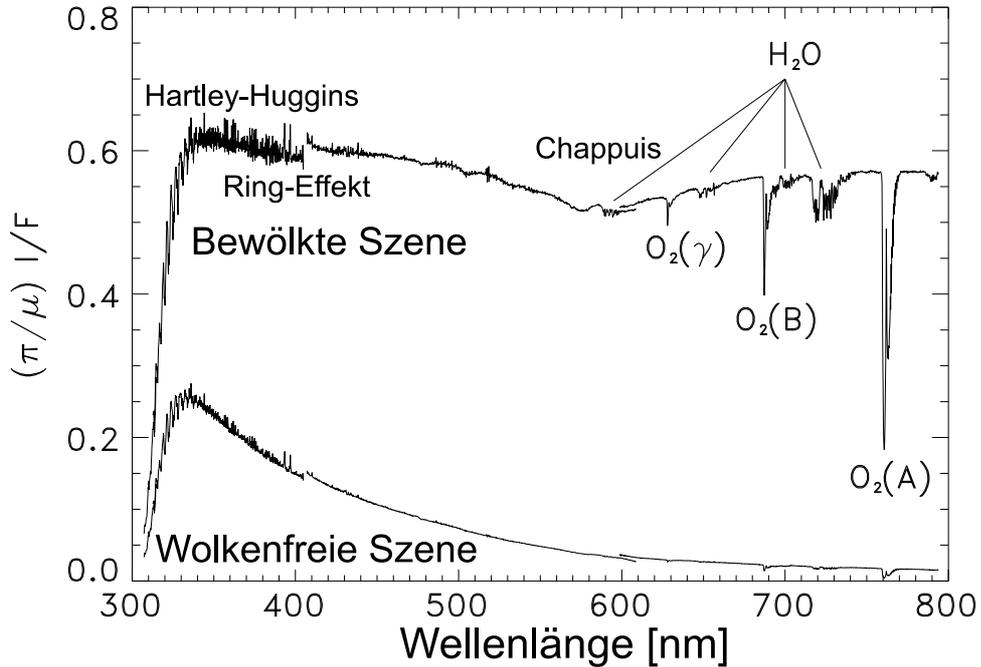


Abbildung 2.4: Sonnennormierte und Sonnenzenitwinkel-korrigierte Messspektren von GOME für bewölkte und unbewölkte Beobachtungsbedingungen. Das Wellenlängenintervall reicht von 300 bis 800 nm. Benannt sind in dem Spektren noch die verschiedenen Linienabsorber im sichtbaren Bereich sowie die Banden des Ozons und der Einflussbereich des Ring-Effektes. Adaptiert von Burrows et al. (1999b).

rückgestreute Intensität ist bei Bewölkung aufgrund der hohen Wolkenalbedo im Vergleich zur Albedo über Meer oder Land größer.

Die Kühlung der Detektoren wird durch eine Kombination von Peltier-Elementen und Temperatursensoren gewährleistet, die auf die Unterseite der Detektoren geklebt sind. Die Nominaltemperatur liegt bei etwa 238 K. Ein Problem im operationellen GOME-Betrieb ist eine Abschaltung der Kühlung am Detektor (*Cooler Switch Off*, CSO). Durch die erhöhten Detektortemperaturen kann die Wellenlängenzuordnung eines Detektorpixels in nicht zu bestimmender Weise variieren. Dies hat negative Auswirkungen für die Auswertung schwacher Spurengasen und die Ableitung von Ozonprofilen zur Folge, weil das solare Spektrum und das Erdscheinspektrum bei verschiedenen Detektortemperaturen gemessen wurden. Eine solche Betriebsstörung kann auch noch 1 bis 2 Tage nach Eintritt des Ereignisses eine verlässliche Auswertung verhindern. In Abbildung 2.5 sind die aufgetre-

nen CSOs, deren Länge und die Detektortemperatur für den Zeitraum von 1995 bis 2001 aufgetragen. Der Tag, an dem ein CSO stattfand, sowie der Tag danach werden bei der Auswertung von Ozonprofilen nicht berücksichtigt.

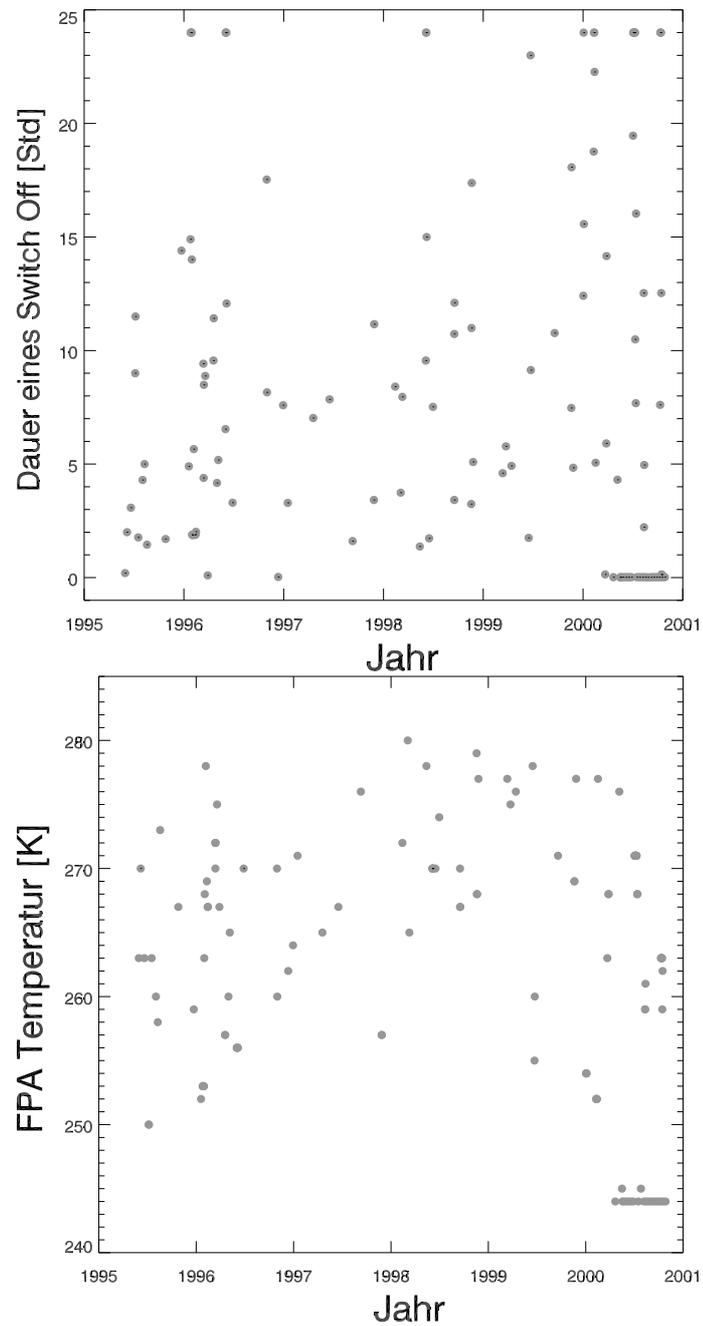


Abbildung 2.5: GOME Cooler Switch Off Ereignisse für die Periode von GOME-Messungen von Juli 1995 bis September 2000. Oben: Dauer des Ereignisses pro Tag [Stunden]. Unten: Gemessene Maximaltemperatur an den Detektoren [K].

## 3 Strahlungstransport in der Atmosphäre

Die solare Strahlung ist Motor für alle chemischen und physikalisch-optischen Prozesse auf der Erde im Wellenlängenbereich der GOME-Messungen. Das Intensitätsmaximum der Sonne liegt etwa  $550\text{nm}$ <sup>1</sup>. Die in die Erdatmosphäre eindringende solare Strahlung unterliegt Streu- und Absorptionsprozessen an Luftmolekülen, Aerosol- und Wolkenteilchen sowie Reflexionen und Absorptionen an der Erdoberfläche. Diese Prozesse werden mit Hilfe der Strahlungstransportgleichung (STG) beschrieben. In die STG gehen die optischen Parameter der Atmosphäre, wie etwa Absorptions- und Streuquerschnitte und Phasenfunktionen von Spurengasen und Aerosolen ein. Die Lösung der STG beschreibt das Strahlungsfeld der Atmosphäre, charakterisiert durch die spektrale Radianz. Die Radianz  $I$  ist definiert als die Anzahl von Photonen, die pro Zeiteinheit innerhalb eines Wellenlängenintervalls ein infinitesimales Flächenelement beliebiger Orientierung innerhalb eines infinitesimalen Raumwinkelements passieren, das in einem Kegel um die Flächennormale liegt [ $\text{Photonen nm}^{-1} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ].

Der Vektor der Radianz ist Funktion von Ort und Richtung und hängt von 5 Koordinaten ab, drei räumliche Koordinaten legen die Position und 2 Winkel-Koordinaten die Richtung des Lichtstrahls fest. Aus der Radianz lassen sich weitere physikalisch wichtige Größen ableiten, zum Beispiel die Irradianz, der aktinische Fluss und die verschiedenen UV-Indizes (UV: Ultravioletter Wellenlängenbereich). Für GOME-Messungen ist die am oberen Rand der Atmosphäre in Richtung des Satelliten austretende spektrale

---

<sup>1</sup> Das Maximum in der Empfindlichkeit des menschlichen Auges ist bei  $500\text{nm}$  zu finden, welches mit dem Maximum in der Energieverteilung der solaren Strahlung nahezu übereinstimmt.

Radianz die entscheidende Größe. Sie ist der Informationsträger für alle Auswertungen.

Allgemein existieren auf der Erde zwei große Strahlungsquellen: die Sonne, deren Strahlungsmaximum nach dem Wienschen Verschiebungsgesetz für eine Schwarzkörperstrahlung von etwa 5900 K bei 550 nm liegt, und die Erde mit einer Durchschnittstemperatur von etwa 290 K und einem Strahlungsmaximum bei 10  $\mu\text{m}$ . Die ungefähre Grenze zwischen diesen beiden Spektralbereichen liegt bei etwa 4  $\mu\text{m}$ . Die Eigenstrahlung der Erde spielt im UV/sichtbaren Bereich für den Strahlungstransport also keine Rolle und kann vernachlässigt werden.

### 3.1 Das Strahlungstransportmodell GOMETRAN

In diesem Abschnitt soll ein kurzer Überblick über das für die Ableitung von Ozonprofilen verwendete Strahlungstransportmodell GOMETRAN gegeben werden (Rozanov et al., 1997). Dieser Abschnitt ist eine verkürzte Version der Beschreibung von Buchwitz (2000) zu dem Thema.

GOME misst die in Richtung des Satelliten kommende Strahlung, die in der Atmosphäre gestreut beziehungsweise am Boden reflektiert wurde. Die eingefangenen Photonen haben dabei verschiedene Teile der Atmosphäre und des Bodens »gesehen«. Die Strahlung unterscheidet sich von der solaren Ausgangsstrahlung, da im System Erde-Atmosphäre neben Streuprozessen auch Absorption von Photonen an den verschiedenen Molekülen und Aerosolen der Erdatmosphäre und sowie Emission auftritt. Um Rückschlüsse aus den von GOME gemessenen spektralen Signaturen auf den Zustand der Atmosphäre zu führen, ist ein physikalisches Modell der Atmosphäre nötig, das alle Eigenschaften des Systems Erde-Atmosphäre hinreichend genau nachbildet. Das Strahlungstransportmodell GOMETRAN ist zur Modellierung der GOME-Spektren entwickelt worden. Es kann neben dem Strahlungsfeld auch die Gewichtsfunktionen<sup>2</sup> von Spurengasen quasi-analytisch und damit schnell berechnen (Rozanov et al., 1998) und ist somit gut ge-

---

<sup>2</sup> *Weighting Functions* WF: höhenaufgelöste Ableitung der Strahlung zum Beispiel nach den Spurengaskonzentrationen

eignet für die Prozessierung der GOME-Daten (Rozanov et al., 1997). Das Modell wird zur Berechnung von Airmass-Faktoren (AMF) (Burrows et al., 1999b) verwendet, die ein notwendiger Teil für den DOAS-Retrieval von vertikalen Gesamtsäulen von Ozon und anderen Spurengasen sind. Weiterhin wird es als Vorwärtsmodell zur Bestimmung von Ozonvertikalprofilen im Inversionsalgorithmus FURM (Hoogen et al., 1999b) verwendet.

In GOMETRAN wird die Strahlungstransportgleichung mit Hilfe der Finiten Differenzen Methode (*finite difference method*) (Barkstrom, 1975; Lenoble, 1985; Rozanov et al., 1997) gelöst. Das Licht wird als skalare Größe betrachtet, die mögliche Polarisierung der Strahlung nicht berücksichtigt. GOMETRAN berechnet die sonnen-normierte, spektrale Radianz  $I$ , auch Intensität genannt, als Lösung der monochromatischen skalaren Integro-Differential-Strahlungstransportgleichung für eine vertikal inhomogene, planparallele Modellatmosphäre:

$$\mu \frac{dI(z, \mu, \phi)}{dz} = -\sigma_e(z)I(z, \mu, \phi) + \frac{\sigma_s(z)}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 d\mu' p(z, \mu, \mu', \phi, \phi') I(z, \mu', \phi'). \quad (3.1)$$

Die räumliche Position ist bei dieser Approximation durch die Höhe über der Erdoberfläche  $z$  eindeutig charakterisiert. Die Ausbreitungsrichtung wird durch den Cosinus des Zenit- beziehungsweise Polarwinkels  $\theta$  mit  $\mu = \cos \theta$ , sowie durch den relativen Azimutwinkel  $\phi$  bezüglich der Sonnenrichtung beschrieben.  $\phi = 0$  kennzeichnet dabei die Ausbreitungsrichtung der ungestreuten solaren Photonen. Der Volumen-Extinktionskoeffizient  $\sigma_e$  [ $\text{km}^{-1}$ ] ist die Summe des Volumen-Absorptionskoeffizienten  $\sigma_a$  und Volumen-Streukoeffizienten  $\sigma_s$ . Die Streu-Phasenfunktion  $p(z, \mu, \mu', \phi, \phi')$  ist eine gewichtete Summe der Rayleigh-, Aerosol- und Wolken-Phasenfunktionen [ $\text{sr}^{-1}$ ], normiert auf  $4\pi$ . Sie beschreibt die Winkelverteilung der gestreuten Strahlung, das heißt welcher Anteil der ursprünglich in Richtung  $(\mu', \phi')$  gehenden Strahlung in die Richtung  $(\mu, \phi)$  gestreut wird.

Die genaue Herleitung des STG und eine Einführung in die Finite-Differenzen-Methode finden sich bei Buchwitz (1997, 2000) und Hoogen (1998). Die wichtigsten physikalischen Effekte, die für die Auswertung der STG nötig sind, werden im nächsten Abschnitt zusammengefasst.

## 3.2 Atmosphärenphysikalische Bestandteile des Modells

### 3.2.1 Kontinuumsabsorptionen im UV/Sichtbaren

Absorptionsspektren entstehen dadurch, dass die Energie des in ein Absorber einfallenden Lichts in molekulinterne Energie umgewandelt wird. Bei der Photodissoziation werden die Moleküle infolge der Lichtabsorption aufgespalten. Die entstehenden Spektren lassen sich durch die spektrale Position und Komplexität voneinander unterscheiden. Sie sind ausgezeichnet durch die Einteilung der Gesamtenergie des Moleküls in die Formen elektronische, Schwingungs- und Rotations-Energie.

Die Rotationsenergie wird durch die Drehung der Moleküle um ihren Schwerpunkt definiert, die Schwingungsenergie durch Schwingungen der Atomkerne um ihre Gleichgewichtspositionen und die elektronische Energie durch Bewegungen der Elektronen um die Kerne, genauer gesagt durch die Elektronenorbitale. Die drei Bewegungszustände können sich bei Absorption von Strahlung einzeln oder gemeinsam ändern.

Reine Rotationsspektren sind im fernen Infrarot- und Mikrowellenbereich zwischen etwa  $1\text{--}100\text{ cm}^{-1}$  Wellenzahlen zu finden. Das entspricht einem Frequenzbereich von  $3\cdot 10^{10}\text{--}3\cdot 10^{12}\text{ Hz}$  und Wellenlänge von  $100\text{ }\mu\text{m--}1\text{ cm}$ . Im nahen und mittleren infraroten Spektralbereich liegen diejenigen Spektren, die durch kombinierte Änderung des Rotations- und Schwingungszustandes eines Moleküls hervorgerufen werden (Rotations-Schwingungsspektren). Das Zusammenspiel beider Bewegungsformen führt zu einer großen Linienzahl und Komplexität der Spektren. Die Vibrationsspektren liegen etwa zwischen  $10^2\text{--}10^4\text{ cm}^{-1}$  ( $3\cdot 10^{12}\text{--}3\cdot 10^{14}\text{ Hz}$ ,  $1\text{--}100\text{ }\mu\text{m}$ ). Sehr energiereiches Licht kann die Struktur eines Moleküls so stark stören, dass es zerfällt. Dieser Vorgang wird als Photodissoziation bezeichnet. Die im kurzwelligen, das heißt im ultravioletten bis sichtbaren Spektralbereich gelegenen Spektren entsprechen meist simultanen Änderungen sowohl der Elektronenanordnung, als auch der Schwingung und Rotation eines Moleküls. Elektronische Spektren liegen zwischen etwa  $10^4\text{--}10^6\text{ cm}^{-1}$  ( $3\cdot 10^{14}\text{--}3\cdot 10^{16}\text{ Hz}$ ,  $10\text{ nm--}1\text{ }\mu\text{m}$ ).

Bei den von vielen Schwingungs- und Rotationsübergängen begleiteten elektronischen Übergängen entstehen oft breite Absorptionsbanden im

Spektrum, deren Struktur sehr kompliziert sein kann. Oft handelt es sich um kontinuierliche Spektren, in denen einzelne Linien nicht mehr aufgelöst werden können (Kontinuumsabsorptionen). Vom sichtbaren bis in den Mikrowellenbereich sind die Spektren jedoch von Absorptions- beziehungsweise Emissionslinien dominiert.

Ein Maß für die Absorptionseigenschaften von Molekülen stellt der Absorptionsquerschnitt  $C_a$  dar, der im Allgemeinen temperatur- und druckabhängig ist. Das Produkt aus Absorptionsquerschnitt [ $\text{cm}^2$ ] und Konzentration<sup>3</sup>  $\rho$  [ $\text{cm}^{-3}$ ] eines Molekültyps in einem Volumen ist der Absorptionskoeffizient  $\sigma_a$  [ $\text{cm}^{-1}$ ]. Die optische Dicke  $\tau$  [-] ist der entlang eines Lichtweges integrierte Absorptionskoeffizient als Funktion von Absorberverteilung und Integrationsweg. Nach dem monochromatischen Beer-Lambertschen Gesetz nimmt die Lichtintensität  $I$  entlang des Lichtweges  $z$  für eine Wellenlänge  $\lambda$  [nm] exponentiell ab:

$$I_\lambda(z) = I_{0\lambda} \exp(-\tau_\lambda(z)) \quad (3.2)$$

mit der optischen Dicke

$$\tau_\lambda(z) = \int_{l_0}^l C_{a,\lambda}(z') \rho(l') dl'. \quad (3.3)$$

Nach den Gleichungen 3.1 und 3.2 ist die Atmosphäre bestimmt, wenn man die wellenlängenabhängigen Streu- und Absorptionsquerschnitte und die höhenabhängigen Konzentrationen der Absorber kennt. In GOME-TRAN werden die wichtigsten Absorber im GOME-Wellenlängenbereich erfasst:  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{ClO}$ ,  $\text{OCIO}$ ,  $\text{BrO}$ ,  $\text{HCHO}$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_2$  und  $\text{O}_4$ .

### 3.2.2 Rayleigh- und Raman-Streuung

Die Streuung von elektromagnetischer Strahlung an Molekülen mit Teilchengrößen, die viel kleiner als die eingestrahlte Wellenlänge sind, wird als

---

<sup>3</sup> Konzentration und Teilchenzahldichte werden hier synonym verwendet.

Rayleigh-Streuung bezeichnet. Der Rayleigh-Streuquerschnitt  $C_s^R$  [ $\text{cm}^2$ ] ist gegeben durch (Chandrasekhar, 1960; Goody und Yung, 1989)

$$C_s^R = \frac{32\pi^3(m-1)^2}{3N^2\lambda^4} F_K \quad (3.4)$$

mit dem King-Korrekturfaktor  $F_K$

$$F_K = \frac{6+3\delta}{6-7\delta}. \quad (3.5)$$

$N$  ist die Teilchenzahldichte der Luft [Moleküle  $\text{cm}^{-3}$ ] und  $m$  der wellenlängenabhängige Brechungsindex.  $N$  und  $m$  beziehen sich in Formel 3.4 auf Standard-Druck und -Temperatur ( $p = 1013 \text{ hPa}$ ,  $T = 288 \text{ K}$ ). Der Depolarisationsfaktor  $\delta$  ist ein Maß für die Anisotropie der Streuer, hervorgerufen durch die Asphärizität der Moleküle Stickstoff und Sauerstoff.  $\delta$  hat eine Größe von etwa 0,03 (Bates, 1984; Young, 1980; Eltermann, 1968). Der Rayleigh-Streukoeffizient  $\sigma_s^R$  ergibt sich aus der Multiplikation von Rayleigh-Streuquerschnitt  $C_s^R$  mit der Luftdichte  $N(p, T)$ .

Die auf  $4\pi$  normierte Rayleigh-Phasenfunktion  $p^R$  als Funktion des Streuwinkels  $\Theta$  ist gegeben durch (Goody und Yung, 1989)

$$p^R(\Theta) = \frac{3}{2} \frac{(1+\delta) + (1-\delta)\cos^2\Theta}{2+\delta}. \quad (3.6)$$

Neben der elastischen Streuung treten inelastische Streuprozesse auf. Es kommt hierbei zu einer Verschiebung der Wellenlänge von eingestrahelter und gestreuter Strahlung. Der wichtigste Prozess wird als Rotations-Raman-Streuung (RRS) bezeichnet (Joiner et al., 1995; Vountas et al., 1998; Vountas, 1998). Die inelastische Streuung solarer Strahlung an Luftmolekülen hat zur Folge, dass die Fraunhofer-Linien im direkten Sonnenlicht tiefer sind als im gestreuten Licht. Für die »Auffüllung« der solaren Fraunhofer-Linien, die von Shefov (1959) und von Grainger und Ring (1962) beschrieben wurden, hat sich der Name Ring-Effekt eingebürgert. Die RRS wird in GOMETRAN berücksichtigt (Vountas et al., 1998). Dazu werden sogenannte Ring-Spektren RS im voraus berechnet und tabelliert:

$$RS = \ln \frac{R_{+rrs}}{R_{-rrs}}. \quad (3.7)$$

Hierbei bezeichnen  $R_{+rs}$  und  $R_{-rs}$  die am Oberrand der Atmosphäre in Zenitrichtung gestreuten Radianzen, berechnet jeweils mit und ohne Berücksichtigung der RRS. Die Ring-Spektren hängen dabei von Sonnenzenitwinkel, Beobachtungsgeometrie, Zusammensetzung der Atmosphäre und Albedo ab.

### 3.2.3 Aerosole, Wolken und Erdoberfläche

Als Aerosolpartikel bezeichnet man feste und flüssige Schwebeteilchen der Luft mit Radien, die typischerweise zwischen  $0,01 \mu\text{m}$  und  $10 \mu\text{m}$  liegen. Aerosole beeinflussen vor allem als Streuer den Strahlungstransport im solaren Spektralbereich. Absorption spielt eine relativ geringe Rolle, außer bei Vulkanausbrüchen, Wüstenstürmen und großflächiger Biomassenverbrennung.

Der Aerosol-Streukoeffizient  $\sigma_s^A$  sowie der Aerosol-Absorptionskoeffizient  $\sigma_a^A$  sind gegeben durch:

$$\sigma_s^A(z) = C_s^A(z) \rho^A(z) \quad (3.8)$$

$$\sigma_a^A(z) = C_a^A(z) \rho^A(z). \quad (3.9)$$

$C_s^A$  und  $C_a^A$  sind die Aerosol-Streu- und Absorptionsquerschnitte und  $\rho^A$  die Aerosolteilchenzahldichte. Die Querschnitte von Aerosolen sind komplexe Funktionen von Wellenlänge und mikrophysikalischen Teilcheneigenschaften wie Brechungsindex, Teilchengrößenspektrum und Form, die im Allgemeinen analytisch nicht darstellbar sind. Die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion ist mit  $\lambda^{-1,5}$  bis  $\lambda^{-0,5}$  im Vergleich zur Rayleigh-Streuung nur schwach ausgeprägt. In GOMETRAN ist neben dem LOWTRAN/MODTRAN Aerosolmodell (Kneizys et al., 1996) auch ein Programm implementiert, mit dem die optischen Parameter nach der Mie-Theorie berechnet werden (Wiscombe, 1979; Hoogen, 1995).

In Abbildung 3.1 ist die gesamtatmosphärische optische Dicke verschiedener Komponenten im UV/vis-Messbereich von GOME als Funktion der Wellenlänge dargestellt. Im UV-Bereich unterhalb etwa  $310 \text{ nm}$  ist Ozon der größte Absorber, man erkennt deutlich die Struktur der Huggins-Banden. Für Wellenlängen im sichtbaren Bereich oberhalb etwa  $400 \text{ nm}$  können Aerosole aufgrund ihrer mit der Wellenlänge schwach variierenden Streueigenschaften den stärksten Beitrag liefern. Zwischen Ozonabsorption und

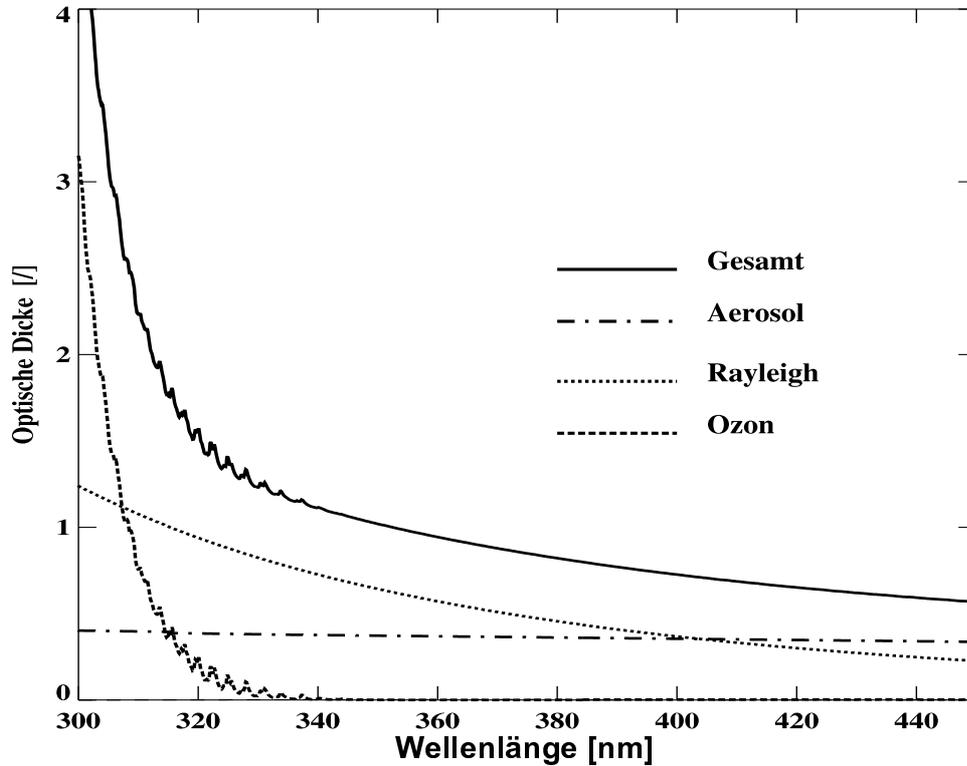


Abbildung 3.1: Optische Dicke [-] von Absorbern und Streuern im Bereich der UV-A-Strahlung (315–400 nm). Abbildung entnommen aus Eichmann (1995).

Aerosol-Streuung liegt der Bereich, in dem die stark wellenlängenabhängige Rayleighstreuung die stärkste Komponente für die optische Dicke ist. Die optische Dicke von  $\text{NO}_2$  ist vergleichsweise klein und liefert nur um 400 nm geringe Beiträge zur optischen Gesamtdicke.

Wolken haben einen signifikanten Einfluss auf den Strahlungstransport in der Troposphäre. In GOMETRAN können zwei Formen der Parametrisierung troposphärischer Wasserwolken verwendet werden (Kurosu, 1997; Kurosu et al., 1997).

Wolken als Lagen werden als planparallele, homogene Schicht endlicher vertikaler Ausdehnung in die Modellatmosphäre eingefügt. Wolkenober- und -untergrenze sind dabei frei wählbar und verschiedene Wolkentypen sind durch ihre Tropfengrößenspektren definiert. Der Strahlungstransport innerhalb einer Wolke wird unter Berücksichtigung der Mehrfachstreuung exakt berechnet. Aufgrund hoher optischer Dicken und stark asymmetri-

scher Phasenfunktionen der Wolkenteilchen ist eine sehr feine Höhen- und Winkeldiskretisierung erforderlich.

Bei Wolken als reflektierende Oberflächen wird der Einfluss des Strahlungsfelds innerhalb und unterhalb der Wolke vernachlässigt. Man kann Wolken so als bidirektional reflektierende Oberflächen behandeln. Das für den jeweiligen Wolkentyp charakteristische Reflexionsmuster wird über Reflexionsfunktionen beschrieben, die von Zenitwinkel und relativem Azimut von einfallenden und reflektierten Strahl abhängen.

Aber auch diese Parametrisierung ist für die Verwendung im Ozonprofilalgorithmus FURM zu langsam, um sie für eine globale Auswertung der GOME-Spektren zu verwenden. So wird im quasi-operationellen Betrieb auf die noch einfachere Beschreibung von Wolken als Lambertsche Reflektoren in einer bestimmten Höhe zurückgegriffen.

Die Erdoberfläche wird als Lambertscher Reflektor mit einer wellenlängenabhängigen Bodenalbedo betrachtet. Die Höhe des Erdbodens bezüglich der Meereshöhe kann berücksichtigt werden und entstammt einer Datenbank von Guzzi (1993).

### 3.3 Diskretisierung der Strahlungstransportgleichung

Um die Radianz mit Hilfe der Methode der Finiten Differenzen berechnen zu können, muss die STG geeignet diskretisiert werden. Die Integro-Differentialgleichung wird in ein oder mehrere lineare Gleichungssysteme überführt, die mit Hilfe einer Matrixinversion (LU-Zerlegung beziehungsweise Bandmatrix-Zerlegung) gelöst wird. Allgemein gilt für die STG (Sobolev, 1975; Lenoble, 1985):

$$\frac{dI}{ds} = \varepsilon(S - I). \quad (3.10)$$

Der Abstand zweier infinitesimal benachbarter Punkte im Raum ist  $ds$ ,  $dI$  die Änderung der Strahlung  $I$  zwischen diesen Orten,  $\varepsilon$  der Extinktionskoeffizient und  $S$  die sogenannte Quellfunktion, die in erster Linie durch die Mehrfachstreuung determiniert ist.

Eine Näherung im Strahlungstransport ist die Annahme einer planparallelen Atmosphäre, wobei sowohl die Krümmung der Erdatmosphäre, als auch die horizontale Inhomogenität vernachlässigt werden. Für Sonnenzenitwinkel unter etwa  $75^\circ$  und Nadirmessungen ist dies eine zulässige Approximation. Für größere Sonnenzenitwinkel kann man die einfach gestreute Strahlung separat in einer sphärischen Atmosphäre mit Brechungseigenschaften berechnen und belässt die mehrfachgestreute Strahlung in planparalleler Atmosphäre. Dies wird als »pseudo-sphärische Approximation« bezeichnet (Eichmann, 1995; Rozanov et al., 2000). Man erhält ausreichend genaue Ergebnisse bis etwa  $92^\circ$  Sonnenzenitwinkel.

Die Definition der Obergrenze der Atmosphäre und des Bodens sind Randbedingungen für den Strahlungstransport in planparallelen Medien. Am Oberrand der Atmosphäre  $z_0$  ist die nach unten gerichtete Radianz  $I^-$  durch die solare Einstrahlung bestimmt:

$$I^-(z_0, \mu, \phi) := I(z_0, -\mu, \phi) = \pi F \delta(\mu - \mu_0) \delta(\phi - \phi_0). \quad (3.11)$$

Hierbei ist  $I^-(z_0, \mu, \phi)$  die Radianz in Richtung  $-\mu$  und  $\phi$  am Oberrand der Atmosphäre,  $\mu_0$  und  $\phi_0$  definieren die Sonnenrichtung.  $\pi F$  ist der (spektrale) solare Fluss beziehungsweise die solare Irradianz, also die Energie, die durch eine am Oberrand der Atmosphäre in Sonnenrichtung orientierte Einheitsfläche (Normalenvektor in Sonnenrichtung) pro Zeit- und Spektraleinheit (Bandbreite) geht. Die Randbedingung am Unterrand der Atmosphäre  $z = 0$  ist für eine Lambertsche Oberfläche der Albedo  $A$  gegeben durch:

$$I^+(0, \mu, \phi) := I(0, +\mu, \phi) = \frac{A}{\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 I^-(0, \mu', \phi') \mu' d\mu'. \quad (3.12)$$

Die Gleichung setzt die am unteren Rand der Atmosphäre nach oben gehende Strahlung  $I^+$  über Bodenreflektion in Beziehung zur nach unten gehenden Strahlung  $I^-$ .

Zur Lösung der STG mit obigen Randbedingungen wird die Strahlung in einen direkten und einen diffusen Anteil aufgespalten. Diese Anteile werden weiter zerlegt in aufwärts- und abwärtsgerichtete Strahlungsanteile. Man erhält so zwei gekoppelte Gleichungen für das diffuse Strahlungsfeld. Die direkte Strahlung wird wie oben erwähnt separat berechnet. Die

Azimet-Abhängigkeit der Strahlung sowie der Phasenfunktionen wird in eine Fourier-Reihe entwickelt. Das heißt, dass die beiden gekoppelten Integro-Differential-Gleichungen in den Koordinaten  $z$ ,  $\mu$  und  $\phi$  in ein äquivalentes System von  $N + 1$  unabhängigen Gleichungen in den Koordinaten  $z$  and  $\mu$  transformiert werden. Hierzu werden die Phasenfunktionen  $p(\cos \Theta)$  mit dem Streuwinkel  $\Theta$  in Legendre-Reihen entwickelt. Die Höhenkoordinate  $z$  wird in Lagen  $[N_z]$  diskretisiert und die Zenit-Koordinaten  $\mu$  und  $\mu'$  werden als Gauß'sche Quadraturpunkte  $[N_\mu]$  bestimmt. So entsteht ein diskretes Gleichungssystem der Form

$$\mathbf{C}\mathbf{l} = \mathbf{r}. \quad (3.13)$$

Die Matrix  $\mathbf{C}$  und der Vektor  $\mathbf{r}$  enthalten die bekannten Größen, der Vektor  $\mathbf{l}$  das unbekannte Strahlungsfeld. Die Dimension der Matrix  $\mathbf{C}$  ist  $N \times N$  mit  $N = N_\mu \times (N_z + 2)$ . Die Anzahl der Spalten beziehungsweise Reihen der Matrix ist gleich dem Produkt der diskretisierten Zenitwinkel und Höhenschichten.

### 3.4 Gewichtsfunktionen

Die Gewichtsfunktionen beschreiben die Änderung der Messgröße bei einer Änderung der jeweiligen Eingabeparameter. Sie sind eine wichtige Ausgabegröße von GOMETRAN weil sie für die Inversion von essentieller Bedeutung sind. Mathematisch lässt sich dieser Zusammenhang wie folgt ableiten. Die Darstellung wurde in verkürzter Form von Hoogen (1998) übernommen.

Die vom Messinstrument empfangene spektrale Radianz ist  $I_I(\omega_I, \mathbf{p}(z))$ . Der Vektor der atmosphärischen Parameter  $\mathbf{p}(z)$  ist aus den atmosphärischen Parametern  $p_j(z)$ , die das Strahlungsfeld beeinflussen (zum Beispiel das Vertikalprofil eines Spurengases), gebildet. In der Größe  $\omega := \{z, \mu, \phi\}$  werden die Höhe  $z$ , der Zenitwinkel  $\mu = \cos \varphi$  und der Azimutwinkel  $\phi$  zusam-

mengefasst. Die Taylor-Reihenentwicklung von  $I_I$  um den mittleren Atmosphärenzustand  $\bar{\mathbf{p}}(z)$  liefert in erster Ordnung:

$$I_I(\omega_I, \mathbf{p}(z)) = I_I(\omega_I, \bar{\mathbf{p}}(z)) + \sum_{j=1}^J \int_0^{z_0} \frac{\delta I_I(\omega_I, \mathbf{p}(z))}{\delta p_j(z)} \Big|_{\bar{\mathbf{p}}(z)} \delta p_j(z) dz, \quad (3.14)$$

mit der Höhe  $z_0$  am Oberrand der Atmosphäre. Die Funktional-Ableitungen

$$w_j(z, \omega_I) := \frac{\delta I_I(\omega_I, \mathbf{p}(z))}{\delta p_j(z)} \Big|_{\bar{\mathbf{p}}(z)} \quad (3.15)$$

bezeichnet man als Gewichtsfunktionen. Sie hängen von »mittlerem« Atmosphärenzustand  $\bar{\mathbf{p}}(z)$ , Messgeometrie und Wellenlänge ab. Die Größe  $w_j(z, \omega_I) \delta p_j(z) dz$  beschreibt die durch eine infinitesimale Variation des Parameters  $p_j$  in der Höhe  $z$  hervorgerufene Änderung der am Instrument ankommenden Radianz. Gleichung 3.14 und 3.15 lassen sich zusammenfassen zu

$$\delta I_I(\omega_I) = \sum_{j=1}^J \int_0^{z_0} w_j(z, \omega_I) \delta p_j(z) dz. \quad (3.16)$$

Hierbei handelt es sich um eine Fredholmsche Integralgleichung 1. Art mit den Kernen  $w_j(z, \omega_I)$ . Die Lösung der Gleichung, das heißt die Bestimmung der Abweichungen  $\delta p_j$  der aktuellen Atmosphärenparameter  $p_j$  von einem »mittleren« klimatologischen Wert  $\bar{p}_j$  ist Ziel der Inversion der GOME Messungen, wenn eine kontinuierliche Größe, wie zum Beispiel das Vertikalprofil von Ozon, bestimmt werden soll.

Die Gewichtsfunktionen lassen sich einerseits gemäß ihrer funktionalen Definition 3.15 mit Hilfe numerischer Störungsrechnung bestimmen. Diese Vorgehensweise, die für die Ableitung von Spurengas-Profilen aus GOME-Messungen erforderlich ist, ist bei der großen Anzahl von Höhenniveaus und Wellenlängen sehr rechenzeitintensiv.

Die in GOMETRAN implementierte Methode der finiten Differenzen erlaubt die quasi-analytische Berechnung der Gewichtsfunktionen, wodurch die Auswertung großer Datenmengen überhaupt erst möglich wird. Eine detaillierte Beschreibung dieses neuartigen Verfahrens findet sich in (Roza-

et al., 1998). Die Gewichtsfunktionen ergeben sich bei der Berechnung des Strahlungsfeldes ohne zusätzlichen Rechenaufwand. Dies ist ein entscheidender Vorteil gegenüber der zeitaufwendigen Berechnung der Gewichtsfunktionen durch numerische Störungsrechnung.



## 4 GOME Inversionsalgorithmen

In diesem Kapitel werden die Algorithmen zur Bestimmung von Spurengaskonzentrationen aus GOME-Radianzmessungen beschrieben. Die Theorie der Inversion wird in Abschnitt 4.1 erklärt. Das GOME-Auswerteverfahren DOAS zur Bestimmung von Spurengas-Vertikalsäulen von Kontinuumsabsorbieren wie Ozon im UV-sichtbaren Spektralbereich wird in Abschnitt 4.2 beschrieben. DOAS ist die Grundlage für die operationelle Auswertung. Die Bereitstellung der sogenannten Level-2 Datenprodukte<sup>1</sup>, also der Ozon- und Stickstoffdioxid-Gesamtsäulen, wird damit durchgeführt. »Operationell« bedeutet hier die fortlaufende, automatisierte Auswertung der GOME-Spektren an zentraler Stelle durch das Deutsche Fernerkundungs-Datenzentrum (DFD) des Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Oberpfaffenhofen im Auftrag der *European Space Agency* (ESA).

Die Berechnung von Vertikalprofilen des Spurengases Ozon mit Hilfe des Algorithmus FURM (*Full Retrieval Model*) ist die Grundlage dieser Arbeit. Der FURM Algorithmus wird in Abschnitt 4.3 beschrieben.

### 4.1 Inversionstheorie

In der Fernerkundung werden geophysikalische Größen, auch Zielgrößen genannt, nicht direkt gemessen. Stattdessen wird eine andere physikalische Größe (Messgröße) gemessen, die in einem bekannten Zusammenhang zu der Zielgröße stehen muss. Aus der Invertierung der Messgröße bei bekannter funktionaler Beziehung kann die Zielgröße dann abgeleitet werden.

Im System Erde-Atmosphäre wird die Strahlung der Sonne durch Streuung, Reflexion und Absorption verändert. GOME misst den Anteil der Strahlung, der aus der Erdatmosphäre aus einem bestimmten Winkelbe-

---

<sup>1</sup> Level-1 Produkte sind die kalibrierten und kollokierten Spektren von GOME.

reich in Nadir-Richtung herausgestreut wird, die Radianz  $R$ , gemessen in [Photonen  $s^{-1} nm^{-1} cm^{-2} sr^{-1}$ ], von Erdoberfläche und Atmosphäre. Separat wird einmal täglich die Irradianz der Sonne  $I_0$  [Photonen  $s^{-1} nm^{-1} cm^{-2}$ ] gemessen.

Aus dem Vergleich von gemessenen und modellierten Spektren kann auf Parameter wie Gesamtgehalt oder vertikale Verteilung von Spurenstoffen wie Ozon rückgeschlossen werden. Die Messung findet allgemein bei einer diskreten Zahl von Wellenlängen statt. Der Messvektor  $\mathbf{y}$  wird dann durch

$$\mathbf{y} = [y_1, y_2, \dots, y_m]^T \quad (4.1)$$

repräsentiert, wobei in diesem Fall  $m$  die Anzahl der Wellenlängen ist.

Der Zustandsvektor  $\mathbf{x}$

$$\mathbf{x} = [x_1, x_2, \dots, x_n]^T \quad (4.2)$$

ist Repräsentant der Zielgrößen mit der Anzahl von Parametern  $n$ . Er enthält alle Parameter, die für das Auswerteverfahren wichtig sind. Neben Zielgrößen, wie dem diskretisierten beziehungsweise parametrisierten Vertikalprofil von Ozon, kann  $\mathbf{x}$  weitere Parameter enthalten, die für das Retrieval wichtig sind, beispielsweise die breitbandigen Strukturen der Aerosolstreuung und der Bodenreflektion.

Der Zusammenhang von Zustands- und Messvektor wird im Vorwärtsmodell  $F$  beschrieben:

$$\mathbf{y} = F(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \varepsilon. \quad (4.3)$$

Der Messfehler  $\varepsilon$  ist eine dem Modell hinzugefügte Komponente. Im Modellparametervektor  $\mathbf{b}$  sind alle Parameter berücksichtigt, welche die Messgröße beeinflussen und als bekannt vorausgesetzt werden, zum Beispiel Absorptionsquerschnitte von Spurengasen oder Rayleigh- und Aerosol-Streuphasenfunktionen. Aus dem bekannten Zustand der Atmosphäre hinsichtlich der Streu- und Absorptionseigenschaften  $\mathbf{b}$  und der Verteilung von Streuern und Absorbern  $\mathbf{x}$  wird ein diskretes Spektrum  $\mathbf{y}$  abgeleitet (Vorwärtsrechnung). Das Vorwärtsmodell ist eine Annäherung an die physikalische Wirklichkeit. Gleichung (4.3) ist deshalb nur näherungsweise gültig,

da Abweichungen durch komplexe beziehungsweise unvollständig bekannte Prozesse auftreten können.

Das zur Vorwärtsrechnung inverse Problem, die Ableitung einer Schätzung  $\hat{\mathbf{x}}$  des Zustandsvektors aus einer Messung, bezeichnet man als Inversion. Eine genaue Beschreibung der Inversionstheorie ist in den Standardwerken von Menke (1989) und Rodgers (2000) zu finden. Rodgers teilt die Inversionsprobleme nach dem Grad der Linearität ein: Lineare Probleme der Form  $\mathbf{y} = \mathbf{K}\mathbf{x}$ , fast lineare Probleme, die im Gültigkeitsbereich von Zustand  $\mathbf{x}$  linearisierbar sind, moderat nichtlineare Probleme, wo eine Linearisierung für die Fehlerabschätzung verwendet werden kann, die Lösung aber iterativ ermittelt werden muss, und stark nichtlineare Probleme, die selbst innerhalb der Fehlergrenzen nichtlinear sind. Für die Ozonprofilinversion wird ein moderat nichtlinearer Zusammenhang vorausgesetzt und die Lösung durch Iteration bestimmt.

Bei der iterativen Lösung des moderat nichtlinearen Problems wird im Iterationsschritt  $i+1$  das Vorwärtsmodell  $F(\mathbf{x})$  um die vorhergehende Schätzung  $\mathbf{x}_i$  linearisiert:

$$\mathbf{y} = \mathbf{y}_i + \mathbf{K}_i(\mathbf{x} - \mathbf{x}_i) + \varepsilon. \quad (4.4)$$

Dabei ist  $\mathbf{y}_i$  das mit der Schätzung  $\mathbf{x}_i$  berechnete Messspektrum. Die  $(m \times n)$ -Matrix  $\mathbf{K}_i$  bezeichnet man als Gewichtsfunktionenmatrix. Sie ist gegeben durch

$$\mathbf{K}_i = \nabla_{\mathbf{x}} F(\mathbf{x}) \Big|_{\mathbf{x}_i} \quad \text{und den Elementen} \quad K_{i,kl} = \left. \frac{\partial F_k(\mathbf{x})}{\partial x_l} \right|_{\mathbf{x}_i}. \quad (4.5)$$

Gewichtsfunktionen sind die Ableitungen der Vorwärtsmodellfunktion, also des Strahlungsfeldes, nach den Zuständen, zum Beispiel den Ozonkonzentrationen der einzelnen Höhen. Die Inversionsaufgabe wird dadurch auf die Lösung eines inhomogenen linearen Gleichungssystems reduziert.

## 4.2 DOAS: Die Bestimmung von Ozon-Gesamtsäulen

Der operationelle Algorithmus zur Ableitung von Spurengas-Vertikalsäulen aus GOME-Messungen ist der DOAS-Algorithmus (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*). Eine genaue Beschreibung des GOME-DOAS-Algorithmus ist bei R.J.D. Spurr (1996) und Burrows et al. (1999b) zu finden. Der GOME-DOAS-Algorithmus ist prinzipiell identisch mit dem DOAS-Algorithmus, der seit vielen Jahren zur Ableitung von Atmosphäreninformationen aus Streulichtmessungen vom Boden aus (Platt und Perner, 1980; Platt, 1994; Richter et al., 1998) verwendet wird. Die Auswertung von GOME-Daten ist allerdings die erste Anwendung des »Standard DOAS« Algorithmus auf globale Messungen vom Weltraum aus. Der operationelle GOME-DOAS-Algorithmus wurde am DLR-DFD in Oberpfaffenhofen in Zusammenarbeit mit anderen Institutionen, unter anderem dem IUP Bremen, implementiert. Zur Ableitung der Airmass-Faktoren für das DOAS-Verfahren wurde in der operationellen Datenauswertung von GOME bislang das Strahlungstransportmodell GOMETRAN eingesetzt.

Im DOAS-Algorithmus werden radiometrisch und spektral kalibrierte Spektren (Level 1 Datenprodukte) verwendet. Sie werden aus den instrumentellen Rohdaten (Level 0) erzeugt, indem Rohdaten in physikalische Einheiten überführt und den Bodenpixeln die Koordinaten in Form von Längen- und Breitengraden zugeordnet werden (Level 0-1 Kalibrierung) (Balzer, W., et al., 1996).

Die wellenlängenkalibrierten und geolokalisierten Erdradianz- und Sonnenirradianz-Spektren werden im sogenannten Level 1-2 Algorithmus verwendet, um die Ozon-Vertikalsäule zu berechnen; zusätzlich wird noch die NO<sub>2</sub>-Vertikalsäule bestimmt. Die Sonnenirradianz wird einmal täglich durch direkte Beobachtung der Sonne über eine Diffuserplatte gemessen (Weber et al., 1998). Zur operationellen Ozon-Auswertung wird das spektrale Fenster von 325 bis 335 nm (Kanal 2) verwendet und für NO<sub>2</sub> das Fenster bei 425-450 nm (Kanal 3) (R.J.D. Spurr, 1996; Burrows et al., 1999b).

Im Folgenden werden die Elemente des operationellen GOME Level 1-2 DOAS-Algorithmus beschrieben, der die Konvertierung der Spektren in Spurengas-Vertikalsäulen vornimmt. Diese Zusammenfassung ist an die Ar-

beit von Buchwitz (2000) angelehnt. Der Algorithmus besteht im Wesentlichen aus drei Teilen:

- Die »schrägen Säulen« (*slant column densities*, SCD) [ $\text{cm}^{-2}$ ] der Spurengase im gewählten spektralen Fitfenster werden mit dem spektralen DOAS-Fitalgorithmus berechnet. Anschaulich entspricht die SCD eines Moleküls der Teilchenzahldichte, die entlang eines beliebigen Lichtweges, welchen die solaren Photonen vom Eintrittsort in die Atmosphäre bis zum Austrittort in Richtung Satellit nehmen, aufintegriert wird.
- Der Wolkenbedeckungsgrades (*cloud cover fraction*) wird mittels des *Initial Cloud Fitting Algorithm* (ICFA) bestimmt. Dieser ist notwendig, um eine Korrektur des Gesamt Ozons für den Spurengasanteil unterhalb von Wolken durchführen zu können. Optisch dicke Wolken wirken im betrachteten Spektralbereich wie eine für das Licht undurchdringliche Schicht, welche die Strahlung in den Weltraum zurückreflektiert. Die von GOME gemessene Strahlung trägt somit keine Information über die Spurengassäule unterhalb von ausgedehnten optisch dicker Wolken. Um dennoch die gesamte vertikale Säule vom Erdboden zum Oberrand der Atmosphäre zu erhalten, müssen der Wolkenbedeckungsgrad eines Bodenpixels aus den Messungen abgeleitet und die Vertikalsäule unterhalb der Wolke abgeschätzt werden, zum Beispiel mittels klimatologischer Informationen.
- Letztlich ist man nicht an der von Beobachtungsgeometrie und Sonnenstand abhängigen Spurengas-SCD interessiert, sondern an der davon unabhängigen vertikalen Säule (*vertical column density*, kurz VCD) [ $\text{cm}^{-2}$ ] des Spurengases, also dem vertikal integrierten Konzentrationsprofil. Das Verhältnis von SCD zu VCD, also der »Verstärkungsfaktor«, wird als Airmass-Faktor (AMF) bezeichnet. Die Berechnung der Airmass-Faktoren (einer pro Spurengas und spektralem Fitfenster) erfolgt mit Hilfe von Strahlungstransportsimulationen in GOMETRAN. Aus SCD und AMF wird dann die VCD berechnet.

Im DOAS-Algorithmus werden die schrägen Säulen bestimmt, indem eine *least-Square* Anpassung durch Linearkombination von Referenz-Absorptionsquerschnitten der Spurengase, Ring-Spektren (zur Berücksichtigung der nicht-elastischen Raman-Streuung) und eines Polynoms niedriger

Ordnung (zur Elimination spektral breitbandiger Störeffekte) an die gemessene optische Dicke  $\tau^{\text{gem}}$  durchgeführt wird:

$$\begin{aligned}\tau^{\text{gem}}(\lambda) &:= -\ln \frac{R(\lambda)}{I_o(\lambda)} & (4.6) \\ &\approx \tau^{\text{mod}}(\lambda) := \sum_j \tau_j^{\text{mod}}(\lambda) \\ &:= \sum_i \text{SCD}_i \cdot \sigma_i(\lambda) + \text{SCD}_{\text{RING}} \cdot \sigma_{\text{RING}}(\lambda) + \sum_{k=0}^n a_k \lambda^k.\end{aligned}$$

$R(\lambda)$  ist die gemessene spektrale Erdradianz und  $I_o(\lambda)$  die gemessene spektrale Sonnenirradianz bei der Wellenlänge  $\lambda$ . Die optische Dicke  $\tau^{\text{mod}}$  des Modells wird als Linear-Kombination der Terme  $\tau_j^{\text{mod}}$  angesetzt, die entweder die optische Dicke eines Spurengases oder einen Korrekturterm darstellen.  $\sigma_i(\lambda)$  ist der bereits bekannte Absorptionsquerschnitt des  $i$ -ten Moleküls.

Die Fitparameter  $\text{SCD}_i$  sind die schrägen Säulen (eine je Spurengas). Weitere Fitparameter sind die Ring-Amplitude  $\text{SCD}_{\text{RING}}$  und die Polynomkoeffizienten  $a_k$ . Diese wellenlängenunabhängigen Parameter werden bestimmt, indem simultan für alle diskreten Wellenlängen in einem geeignet gewählten spektralen Fitfenster die rechte Seite der Gleichung 4.6 (das Modell) an die linke Seite (die Messung) mittels der Methode der kleinsten Quadrate angepasst wird. Die vertikalen Säulen  $\text{VCD}_i$  werden dann aus den  $\text{SCD}_i$  durch AMF-Division bestimmt:  $\text{VCD}_i = \text{SCD}_i / \text{AMF}_i$ .

Der »mittlere Lichtweg«, und damit der Airmass-Faktor, hängt bei Streulichtmessungen auch von Atmosphärenzusammensetzung, Bodenreflektion und Wellenlänge ab. Dies kann mit Hilfe des Konzepts einer »effektiven (oder mittleren) Streuhöhe« veranschaulicht werden. Hierbei wird der Lichtstrahl in einer mittleren Streuhöhe reflektiert, die nicht mit dem Erdboden übereinstimmen muss. In einer optisch dicken Atmosphäre sowie bei niedrig stehender Sonne wird die mittlere Streuhöhe über dem Erdboden liegen. Da die optischen Eigenschaften jeweils Funktionen der Wellenlänge sind, hängt die effektive Streuhöhe (und somit der AMF) ebenfalls von der Wellenlänge ab. Je stärker die Absorption ist, desto höher liegt die Streuhöhe. Weiterhin hängt der Absorptionsquerschnitt allgemein von Druck und Temperatur - und damit wiederum von der Höhe - ab. Dies führt dazu, dass der

Standard DOAS-Algorithmus eine Approximation ist. Er funktioniert für Satellitenmessungen zum Beispiel umso besser, je dünner die Atmosphäre in optischer Sicht bezüglich der relevanten Streu- und Absorptionsprozesse ist.

Das Polynom  $P(\lambda) = \sum_{k=0}^n a_k \lambda^k$  in Gleichung 4.6 wird an die gemessene optische Dicke  $\tau^{\text{gem}}$  mitangepasst, damit das Auswerteverfahren weniger sensitiv gegenüber spektral breitbandigen Störtermen wird. Darunter fallen zum Beispiel die meist nicht genau bekannten Beiträge der Rayleigh- und Mie-Streuung sowie der Bodenreflektion. Hierunter fallen aber auch breitbandige Restfehler der radiometrischen Kalibration, eine genaue spektrale Kalibration ist aber unverzichtbar. Zusätzlich zur linearen least-square Regression mit den schrägen Säulen  $\text{SCD}_i$ , der Ringamplitude  $\text{SCD}_{\text{RING}}$  und den Regressionskoeffizienten  $a_k$  als Fitparameter wird eine zusätzliche nicht-lineare Anpassung zur Verbesserung der relativen Wellenlängenkalibration zwischen den einzelnen Referenzspektren eingesetzt (*shift and squeeze*) Algorithmus (Richter et al., 1998).

Die Konvertierung der schrägen in die vertikalen Säulen - einschließlich einer Korrektur für Wolken - wird bei der GOME-Auswertung folgendermaßen durchgeführt:

$$\text{VCD}_i = \frac{\text{SCD}_i + f \cdot \text{GVC}_i \cdot \text{AMF}_{\text{CLD},i}}{f \text{AMF}_{\text{CLD},i} + (1-f) \text{AMF}_{\text{CLR},i}}. \quad (4.7)$$

$\text{AMF}_{\text{CLR},i}$  und  $\text{AMF}_{\text{CLD},i}$  sind die mittels Strahlungstransportsimulationen berechneten Airmass-Faktoren für den wolkenfreien und den vollständig bewölkten Fall.  $f$  ist der im ICFA-Algorithmus aus der gemessenen Absorptionstiefe der  $\text{O}_2$ -A-Bande abgeleitete Wolkenbedeckungsgrad. Die Terme  $\text{GVC}_i$  sind die sogenannten *ghost vertical columns*, welche der vertikalen Säule des  $i$ -ten Spurengases unterhalb der Wolkenobergrenze entsprechen. Diese Säulenanteile werden nicht von GOME gemessen, sondern aus einer Spurengasprofil-Klimatologie abgeschätzt. Im Falle eines wolkenfreien Bodenpixels ist  $f = 0$  und im Grenzfall vollständiger Wolkenbedeckung  $f = 1$ .

Der benötigte AMF sollte idealerweise nur von geometrischen Faktoren wie Beobachtungsgeometrie und Sonnenstand abhängen, nicht aber von der noch unbekanntem Atmosphärenzusammensetzung oder der meist unbekanntem Bodenreflektion. Für Streulichtmessungen gilt die DOAS-

Gleichung allerdings nur näherungsweise. Grund hierfür ist, dass Gleichung 4.6 nur für einen Weg und eine Wellenlänge gilt, üblicherweise aber ein Kontinuum an Wegen und Wellenlängen zur gemessenen Strahlung beiträgt. Dies kann durch Hinzufügen geeigneter Integrale berücksichtigt werden.

Der AMF kann mit geringem Rechenaufwand berechnet werden, in dem die Strahlungstransportgleichung nur bei einer einzigen Wellenlänge gelöst wird, so wie bei der operationellen GOME-Auswertung eingesetzt:

$$\text{AMF}_i = \frac{\text{SOD}_i(\lambda)}{\text{VOD}_i(\lambda)}. \quad (4.8)$$

Die vertikale optische Dicke VOD ist das vertikal vom Erdboden bis zum Oberrand der Atmosphäre integrierte Produkt aus angenommener Teilchenzahldichte  $\rho_i$  und Absorptionsquerschnitt  $\sigma_i$  des  $i$ -ten Spurengases, also

$$\text{VOD}_i(\lambda) := \int_z \sigma_i(z, \lambda) \rho_i(z) dz \approx \sigma_i(\lambda) \cdot \text{VCD}_i. \quad (4.9)$$

Das Gleichheitszeichen gilt nur für den Fall, dass der Absorptionsquerschnitt  $\sigma_i$  nicht von der Höhe abhängt. Die schräge optische Dicke SOD (*slant optical depth*) eines Spurengases ist definiert über den natürlichen Logarithmus des Quotienten zweier Strahlungswerte:

$$\text{SOD}_i(\lambda) := \ln \frac{I^{-i}(\lambda)}{I^{+i}(\lambda)}. \quad (4.10)$$

Hierbei ist  $I^{+i}(\lambda)$  die sonnen-normierte Strahlung (also  $I = R/I_o$ ) berechnet für die angenommene (»mittlere«) Modell-Atmosphäre und Modell-Albedo, sowie für die aktuelle Beobachtungsgeometrie und den aktuellen Sonnenstand.  $I^{-i}(\lambda)$  wird analog berechnet, jedoch mit einer Ausnahme: das Spurengas, für den der AMF berechnet werden soll (Index  $i$ ), ist hier in der Modell-Atmosphäre »ausgeschaltet« worden.  $\text{SOD}_i$  entspricht somit dem gesamten spektralen Spurengas-Signal oder -»Fingerabdruck« in der simulierten Strahlungsmessung.  $\text{VOD}_i$  würde im Vergleich dazu dem Spurengas-Signal in einer Messung entsprechen, bei der das Licht die Atmosphäre nur einmal in vertikaler Richtung durchlaufen hätte. Das Verhältnis der beiden Größen SOD und VOD gibt daher die relative Zunahme der

Absorption durch das Spurengas aufgrund der Beobachtungsgeometrie an und kann daher als (wellenlängenabhängiger) Lichtweg-Verstärkungsfaktor interpretiert werden. Es ist meist - besonders bei einer optisch dünnen Atmosphäre - nur schwach von der Wellenlänge, der genauen Atmosphärenzusammensetzung und der Bodenreflektion abhängig.

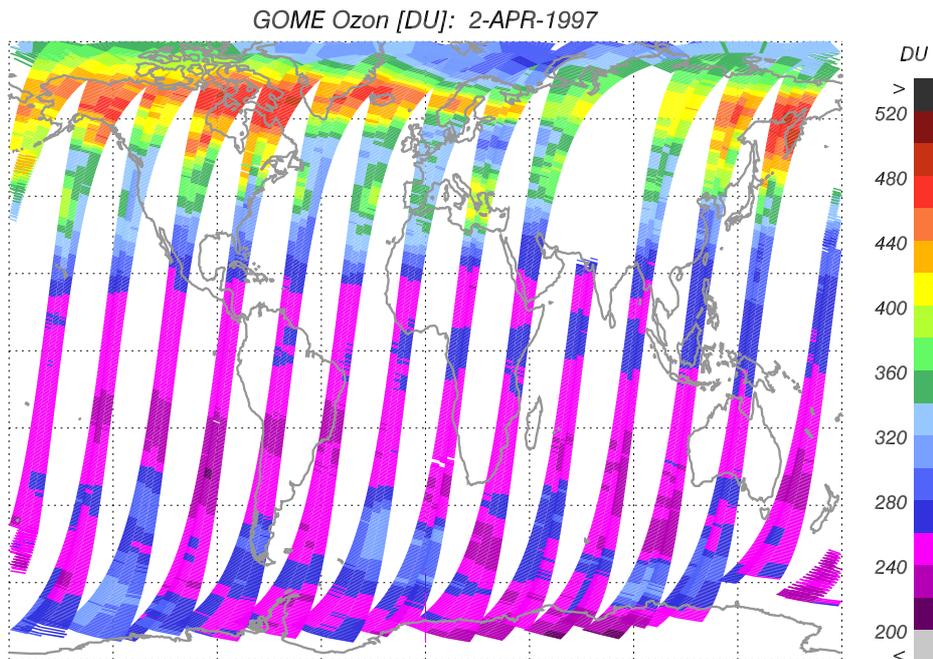


Abbildung 4.1: Gesamtozon [DU] als Funktion von Breiten- und Längengrad [°] für die 14 GOME Orbits vom 2. April 1997. Der Ozongehalt, berechnet aus dem operationellen DOAS-Algorithmus, ist für jeden Messpunkt farblich zwischen 200 und 520DU kodiert worden. Die Projektion ist zylindrisch-äquidistant von  $-80^{\circ}\text{S}$  bis  $+80^{\circ}\text{N}$  und  $-180^{\circ}\text{W}$  bis  $+180^{\circ}\text{O}$ .

Im Fall des einfachen Modells (das heißt wohldefinierter Lichtweg, monochromatisches Licht, usw.) ist  $SOD_i$  gerade  $AMF_i \cdot VOD_i$ , da sich beim dort verwendeten Modell alle anderen (Exponential-) Terme exakt wegkürzen würden, wenn man zwei Modell-Strahlungen mit und ohne Spurengasabsorption durcheinander teilen würde. Die DOAS-Methode setzt voraus, dass der AMF im gewählten spektralen Fitfenster nicht von der Wellenlänge abhängt. Im Falle einer optisch dünnen Atmosphäre ist das in guter Näherung der Fall, nicht jedoch Ozon-Bestimmung im 325-335 nm Fitfens-

ter. Folglich zeigt der Ozon-AMF nach Formel 4.8 eine starke Wellenlängenabhängigkeit insbesondere für große Sonnenzenitwinkel, da hier die Absorption aufgrund der langen Lichtwege am stärksten ist. Damit ist nicht der AMF in der Mitte des spektralen Fitfensters, sondern - in guter Näherung - der kleinste AMF innerhalb des Fitfensters als repräsentativ anzusehen (Burrows et al., 1999b). Im 325-335 nm Fitfenster entspricht dies der Wellenlänge der stärksten Ozonabsorption.

In Abbildung 4.1 ist ein Ergebnis des operationellen DOAS Algorithmus dargestellt: die Ozonsäulen, wie sie orbitweise von GOME für den 2. April 1997 gemessen wurden. Farben im violetten Bereich geben niedrige Ozonwerte um 250 DU, Farben im roten Spektralbereich hohe um 500 DU wieder. Die globale Genauigkeit der Gesamt ozonmessungen von GOME liegt im Bereich von  $\pm 4\%$ . Dies zeigen Vergleiche mit dem NDSC-Netzwerk (*Network for the Detection of Stratospheric Change*) bodengestützter Fernerkundungsinstrumente (Lambert et al., 1999). Für hohe Sonnenzenitwinkel über  $75^\circ$  können Differenzen bis zu 10% auftreten. In polaren Regionen überschätzt GOME niedrige Säulen unterhalb von 260 DU, während die größten Säulen um etwa 4% unterschätzt werden.

### 4.3 FURM: Die Bestimmung von Ozonvertikalverteilungen

Die Idee, Vertikalverteilungen von Ozon aus Nadir-Messungen der rückgestreuten ultravioletten Strahlung abzuleiten, stammt von Singer und Wentworth (1957). Das *Backscatter Ultraviolet* (BUV) Instrument an Bord des NIMBUS-4 Satelliten, der 1970 gestartet wurde, war die erste erfolgreiche Umsetzung der Theorie. Es folgten das *Solar Backscatter Ultraviolet* (SBUV) auf NIMBUS-7, SBUV/2 auf den NOAA-11 und NOAA-14 Polarsatelliten (*National Oceanic and Atmospheric Administration*) und SSBUV für das SPACE SHUTTLE. Diese Instrumente haben UV-Strahlung bei 12 Wellenlängen im Bereich von 252 bis 340 nm mit einer spektralen Bandbreite von 1,1 nm gemessen (Bhartia et al., 1996).

Zur Zeit arbeiten in Europa verschiedene Gruppen (Munro et al., 1998; van der A et al., 1998; Hoogen, 1998; Hasekamp und Landgraf, 2001)

an Inversionsalgorithmen zur Ableitung von Ozonprofilen aus GOME-Messungen, zum Teil unter Verwendung von GOMETRAN als Strahlungstransportmodell. Der FURM-Retrievalalgorithmus, der seit Mitte der 90er Jahre am Institut für Umweltphysik Bremen entwickelt wird, basiert auf einem Optimal Estimation Verfahren, welches in Abschnitt 4.3.2 vorgestellt wird. Das Inversionsergebnis, das Ozonprofil, wird hierbei unter Verwendung von a-priori Informationen über die jahreszeitliche und Breitengradabhängige Form des Profils, zum Beispiel durch klimatologische Mittelwerte und zugehörige Kovarianzmatrizen, stabilisiert. Die Vorarbeiten zu dieser Problemstellung reichen zu den Anfängen der GOME-Entwicklung zurück (Chance et al., 1997). Der gegenwärtige Entwicklungsstand des Algorithmus basiert auf den Arbeiten von de Beek (1998); Hoogen (1998); Bramstedt (2001).

FURM ist bisher für drei Near-Realtime-Kampagnen 1997, 2000 und 2001 für die nordpolare Winter/Frühjahr-Periode von Dezember bis Mai im quasi-operationellen Modus verwendet worden, um Wissenschaftler bei der Kampagnenplanung mit Ozonprofildaten zu versorgen. Die Unterstützung der europäischen arktischen Winter/Frühlingskampagne 1997 und den Near-Realtime Kampagnen danach brachten große Fortschritte in Bezug auf Laufzeitverhalten und die Wahl geeigneter atmosphärenphysikalischer Eingabeparameter. Im Laufe dieser Zeit wurde auf die realistischere Verwendung der tagesaktuellen UKMO-Profilen von Temperatur und Druck umgestellt und eine Klimatologie von Fortuin und Kelder (1998), berechnet aus Ozonsondenmessungen, als a-priori Information verwendet. Zudem wurde ein First-Guess-Wert für das Ozonprofil, abweichend vom a-priori Wert, eingeführt. Das ist nützlich, wenn Ozonprofile entlang eines GOME-Orbits ausgewertet werden und man Pixelcluster für Pixelcluster vorgeht, so dass das berechnete Ozonprofil der vorausgehenden Inversion als First-Guess der aktuellen Inversion verwendet werden kann (Bramstedt, 2001).

### 4.3.1 Probleme der Inversion

Das lineare Gleichungssystem

$$\mathbf{y} = \mathbf{K}\mathbf{x} \quad \text{mit} \quad \mathbf{y} \in \mathbb{R}^m, \quad \mathbf{x} \in \mathbb{R}^n, \quad \mathbf{K} \in \mathbb{R}^{m \times n}, \quad (4.11)$$

hat  $m$  Gleichungen und  $n$  Unbekannte. Der Rang  $r$  der Matrix  $\mathbf{K}$  ist bestimmt durch die Anzahl linear unabhängiger Gleichungen. Für  $r = m = n$  ist das Gleichungssystem wohlbestimmt, die Matrix  $\mathbf{K}$  ist regulär und invertierbar. Die eindeutige Lösung lautet dann

$$\mathbf{x} = \mathbf{K}^{-1}\mathbf{y}. \quad (4.12)$$

Das ist der Idealfall, der bei geophysikalischen Problemen aber selten vorkommt.

Häufig ist die Zahl der linear unabhängigen Gleichungen geringer als die der Unbekannten:  $r < n$ . Solche Gleichungssysteme bezeichnet man als unterbestimmt. Die Matrix  $\mathbf{K}$  ist dann singulär, die Inverse  $\mathbf{K}^{-1}$  existiert nicht. Als schlecht konditioniert (*ill conditioned*) bezeichnet man Probleme mit fast singulärer Matrix  $\mathbf{K}$ . Die Inverse existiert dann zwar, die Eigenwerte der Matrix sind jedoch sehr groß. Das hat zur Folge, dass kleine Änderungen in  $\mathbf{y}$ , beispielsweise durch Messfehler, drastische Änderungen in  $\mathbf{x}$  verursachen können und man oszillierende, instabile Lösungen erhält.

Oft liegen mehr Messungen als Unbekannte vor ( $m > n = r$ ), liegt ein überbestimmtes Problem vor. Ist dabei aber  $r < n$ , so ist das Problem gleichzeitig unterbestimmt. Bei solchen gemischtbestimmten Problemen sind einige Komponenten des Lösungsvektors überbestimmt und andere unterbestimmt. Bei überbestimmten Problemen kann die Lösung mit Hilfe der Least-Square Methode gefunden werden, wo die quadratische Abweichung zwischen  $\mathbf{K}\mathbf{x}$  und  $\mathbf{y}$  minimiert wird. Man berechnet dabei die Ableitung des Ausdrucks  $\mathbf{M}^T\mathbf{M}$  nach  $\mathbf{x}$  mit  $\mathbf{M} = \mathbf{K}\mathbf{x} - \mathbf{y}$  und setzt diese gleich Null. Die Lösung dieser Minimierungsaufgabe ist

$$\hat{\mathbf{x}} = (\mathbf{K}^T\mathbf{K})^{-1}\mathbf{K}^T\mathbf{y}. \quad (4.13)$$

Der Vektor  $\hat{\mathbf{x}}$  ist die beste Schätzung im Sinne der kleinsten Quadrate.

Instabile Lösungen existieren, wenn  $\mathbf{K}^T \mathbf{K}$  fast singularär ist. Um bei schlecht konditionierten Problemen die Lösung zu stabilisieren, können zusätzliche Bedingungen an die Lösung gestellt werden oder bereits vorhandenes Wissen über die Form der Lösung einfließen.

Es gibt beispielsweise jahrzehntelange Messreihen atmosphärischer Parameter, aus denen sich klimatologische Mittelwerte und Variabilitäten der Messgröße ableiten lassen. Informationen über die zu bestimmende Größe, die vor einer Messung vorhanden sind, bezeichnet man als a-priori-Wissen. Diese Informationen werden zur Regularisierung des Inversionsproblems verwendet, indem die Lösung mit der geringsten Abweichung vom klimatologischen Mittelwert, dem sogenannten a-priori-Zustand  $\mathbf{x}_a$ , bestimmt wird. Die Stärke der Regularisierung wird durch das Verhältnis von Messfehlerkovarianzmatrix  $\mathbf{S}_y$  und a-priori-Kovarianzmatrix  $\mathbf{S}_a$  bestimmt. Die Minimierungsaufgabe ist dann gegeben als

$$\mathbf{M}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{M} + (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \rightarrow \min. \quad (4.14)$$

Die Diagonalelemente  $S_{a,ii}$  der a-priori-Kovarianzmatrix entsprechen den Varianzen der Parameter  $x_i$  und die Nichtdiagonalelemente  $S_{a,i \neq j}$  den Kovarianzen von  $x_i$  und  $x_j$ . Die Messfehlerkovarianzmatrix  $\mathbf{S}_y$  ist in der Regel diagonal, weil die einzelnen Messfehler voneinander unabhängig sind. Je größer die Messfehler sind, desto kleiner ist der Beitrag der Messfehlerkovarianz zur Minimierungsaufgabe. Die Lösung wird dann hauptsächlich vom a-priori-Zustand bestimmt. Die Lösung  $\hat{\mathbf{x}}$  der Minimierungsaufgabe in Gleichung 4.14 im Sinne des Optimal-Estimation-Verfahrens lautet (Rodgers, 1976):

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K} \mathbf{x}_a). \quad (4.15)$$

Bei linearen Problemen kann der Messvektor  $\mathbf{y}$  näherungsweise durch die Beziehung

$$\hat{\mathbf{y}} = \mathbf{K}_x \mathbf{x}_t \quad (4.16)$$

mit dem wahren Zustand  $\mathbf{x}_t$  bestimmt werden. Die Zeilen der Matrix  $\mathbf{K}_x$

sind die Gewichtsfunktionen (*weighting functions*), welche die Empfindlichkeit der Messung bezüglich der Änderung der Eingangsparameter wiedergeben. Die Gewichtsfunktionenmatrix  $\mathbf{K}_x$  ist definiert als

$$\mathbf{K}_x = \nabla_x F(\mathbf{x}, \mathbf{b}) \quad (4.17)$$

Wendet man die Näherung 4.16 auf die Optimal-Estimation Lösung 4.15 an, erhält man nach Umformung:

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + (\mathbf{A}\mathbf{x}_t - \mathbf{A}\mathbf{x}_a). \quad (4.18)$$

mit der Modellauflösungsmatrix (*Model Resolution / Averaging Kernel*)  $\mathbf{A}$ :

$$\mathbf{A} = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K}_x. \quad (4.19)$$

Umformen von Gleichung 4.18 liefert mit der Einheitsmatrix  $\mathbf{E}$ :

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{A}\mathbf{x}_t + (\mathbf{E} - \mathbf{A})\mathbf{x}_a. \quad (4.20)$$

Die Gleichung 4.20 zeigt, dass die berechnete Lösung ein mit der Auflösungsmatrix  $\mathbf{A}$  gewichtetes Mittel aus wahren Zustand  $\mathbf{x}_t$  und a-priori-Zustand  $\mathbf{x}_a$  ist. Die Auflösungsmatrix beschreibt, wie die Elemente des wahren Zustandsvektors beeinflusst werden, um den berechneten Lösungsvektor zu ergeben. Im Idealfall gibt es keine Kovarianzen und  $\mathbf{A}$  entspricht der Einheitsmatrix. Die Elemente des Lösungsvektor sind dann keine Linearkombinationen der Elemente des wahren Zustandsvektors.

In Abbildung 4.2 sind Auflösungsfunktionen aus dem für das FURM-Retrieval wichtigen Wellenlängenbereich von 290 bis 355 nm dargestellt. Aus der Halbwertsbreite einer Auflösungsfunktion kann man Aussagen machen über das Auflösungsvermögen des Instruments. Die maximale Höhenauflösung liegt bei etwa 7 km im Bereich oberhalb des Ozonmaximums ab 20 km. Darüber und darunter verschlechtert sich das Auflösungsvermögen auf bis zu 16 km.

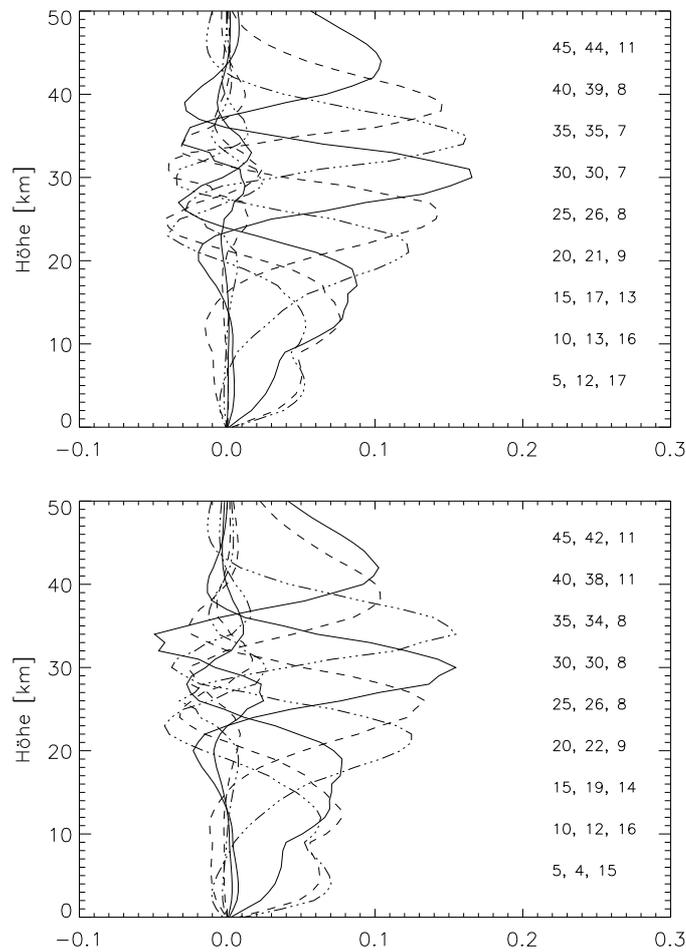


Abbildung 4.2: GOME-Glättungsfunktionen (*averaging kernels*) für den Wellenlängenbereich 290–355 nm für ein Juli-Szenario mittlerer nördlicher Breite und zwei Sonnenzenitwinkeln von 30° (oben) und 70° (unten). Die nominelle und die aktuelle Höhe sowie die Halbwertsbreite (FWHM) des Hauptmaximums sind für jede Auflösungsfunktion angegeben. Abbildung entnommen aus Hoogen (1998).

Die Zahl der unabhängigen Zustandsgrößen beziehungsweise der Rang der Matrix  $\mathbf{K}$  ist deutlich geringer als die Zahl der Elemente des Zustandsvektors. Numerisch ist es deshalb eleganter und stabiler, die Größe des Zustandsvektors zu reduzieren. Dies wird mit Hilfe der sogenannten Kozlov-Informationsmatrix-Methode erreicht (Kozlov, 1983; Hoogen et al., 1999a). Dabei wird die Differenz von a-priori und gesuchtem Zustand in eine Linearkombination von Eigenvektoren der Informationsmatrix  $\mathbf{P}$  entwickelt.

Diese ist verknüpft mit dem Informationsgehalt der Messung (Shannon und Weaver, 1962). Bei der Eigenvektorgleichung tragen nur Eigenvektoren mit einem Eigenwert größer als 1 signifikant zur Information über den Zustand bei (Rodgers, 1996). Aus den so reduzierten Eigenvektoren wird eine Basis des Zustandsraums gebildet. Dadurch lässt sich die Berechnung weniger Eigenvektoren numerisch effizient und stabil durchführen.

### 4.3.2 Modell- und Ziel-Parameter von FURM

Im Retrievalprogramm FURM wird die sich mit der Höhe kontinuierlich ändernde Ozonkonzentration auf 71 äquidistanten Höhenschichten von 0 bis 70 km Höhe diskretisiert. In größeren Höhen oberhalb 70 km ist die Teilchenzahldichte von Ozon so gering, dass sie mit GOME im Nadir nicht mehr detektierbar ist und für die Lösung keine Rolle spielt. Deshalb wird die Modellatmosphäre zur Beschleunigung der Lösungsfindung auf diesen Bereich begrenzt.

Neben der höhenaufgelösten Ozonteilchenzahldichten gibt es eine Vielzahl atmosphärischer Parameter, die nicht unbedingt im Voraus bekannt sind, aber einen signifikanten Einfluss auf die GOME-Messungen haben und deshalb im Retrieval berücksichtigt werden müssen. Zu diesen Parametern gehören die höhenintegrierten Extinktionskoeffizienten (optische Dicke von Aerosolen und Rayleigh-Streuern), die wellenlängenunabhängige mittlere Bodenalbido, die  $\text{NO}_2$ -Gesamtsäulendichte, ein Skalierungsfaktor für den Druck, ein Shiftparameter für die Temperatur und ein Amplitudenfaktor zur Berücksichtigung des Ring-Effekts (Vountas et al., 1998).

Die Kalibration der GOME-Spektren ist nicht ausreichend, um den Optimal-Estimation-Algorithmus ohne weitere Anstrengungen verwenden zu können. Deshalb werden zusätzlich sechs Parameter gefittet, durch die die Messspektren in den einzelnen Kanälen variiert werden können. Im Verlauf des Ozonforschungsprogramms OFP (Zellner et al., 1999; Eichmann et al., 2000a) ist der FURM-Algorithmus (Hoogen, 1998) weiterentwickelt und laufzeitoptimiert worden (Bramstedt, 2001).

Um den Strahlungstransport im optischen Wellenlängenbereich modellieren zu können, müssen die optischen Eigenschaften der Atmosphäre bekannt sein. Die Absorptionsquerschnitte von Ozon,  $\text{NO}_2$  und anderer relevanter

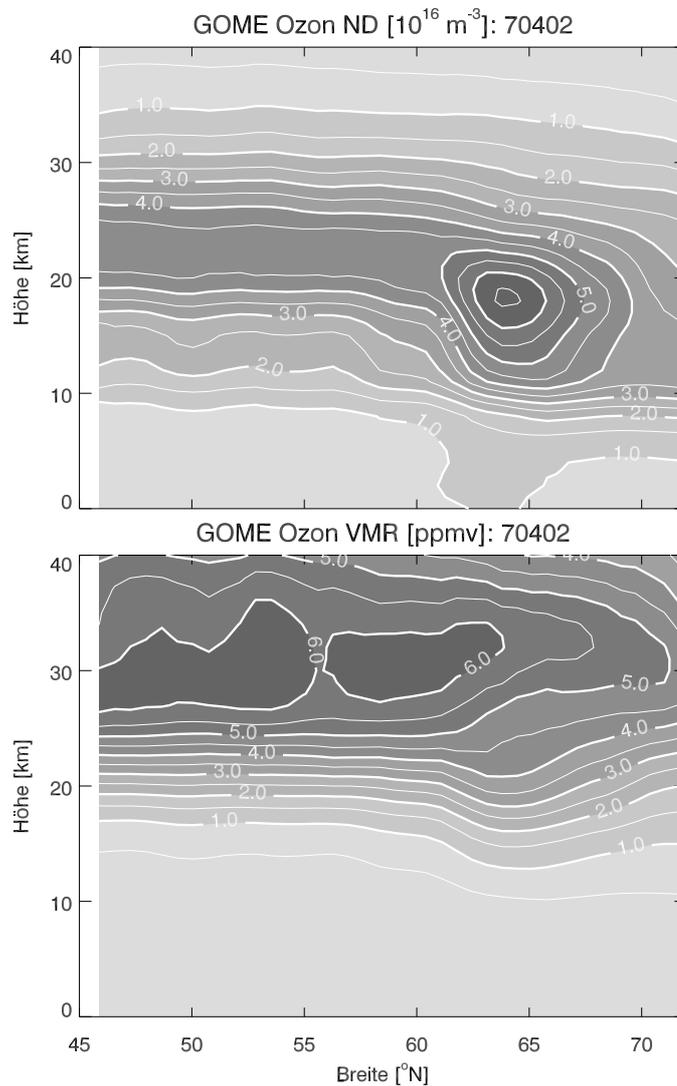


Abbildung 4.3: FURM Ozon Teilchenzahldichte [ $10^{16} \text{ m}^{-3}$ ] (oben) und Volumemischungsverhältnis [ppmv] (unten) als Funktion von Breitengrad [ $^{\circ}$ N] und Höhe [km] entlang eines GOME Orbits über Europa vom 2. April 1997. Der Abstand der Konturlinien beträgt  $0,5 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$  beziehungsweise 0,5 ppmv. Hohe Ozonwerte sind dunkler markiert.

Spurengase, die Streuquerschnitte von Luft, Aerosolen und Wolken, sowie die Reflexionseigenschaften des Bodens werden für den Strahlungstransport benötigt, um das Retrieval im Teilschritt des Vorwärtsmodells GOME-TRAN mit den Eingabeparametern zu versorgen.

Das FURM-Programmpaket, wie es für diese Arbeit verwendet wurde, liegt gegenwärtig in der Version 5 vor. Das Fitfenster für die Auswertung reicht von 290 bis 355 nm und deckt damit die Kanäle 1b und 2 von GOME ab. Für Sonnenzenitwinkel über  $76^\circ$  werden unterschiedliche Scanzeiten in den verwendeten Kanälen 1b und 2 verwendet, womit die Bodenszene, die von beiden Kanälen beobachtet wird, variiert. Dadurch ist die FURM-Auswertung auf GOME-Pixel mit Sonnenzenitwinkeln unter  $76^\circ$  beschränkt. Der Teil des Vortex, der anfangs in der polaren Nacht liegt, wird so erst im Laufe des Februars je nach Lage und Ausdehnung bezüglich der aufgehenden Sonne erfasst. Eine vollständige Überdeckung bis zum Pol wird erst ab Anfang April erreicht.

Als Beispiel für eine FURM-Auswertung ist in Abbildung 4.3 die Teilchenzahldichte sowie das Volumenmischungsverhältnis von Ozon dargestellt. Die einzelnen Profile, die jeweils aus 8 GOME-Pixeln abgeleitet werden, sind entlang des GOME-Orbits über den europäischen Kontinent vom 2. April 1997 als Funktion von Breite und Höhe aufgetragen worden. 8 Pixel entsprechen einer Integrationszeit von 12 s, wie in Abbildung 2.2 dargestellt. Eine Erhöhung des Ozons in der unteren Stratosphäre findet durch Anreicherung aus höheren Schichten statt (siehe Abschnitt 5.2.1). Im VMR-Bild ist das Absinken von Isolinien oberhalb  $60^\circ\text{N}$  durch Absinkprozesse der Luft zu sehen. Im Winter 1997 gab es im Polarwirbel aufgrund heterogener chemischer Prozesse hohe Ozonverluste (siehe Abschnitt 10.1). Der Wirbelrand ist im oberen Bild anhand des Ozongradienten Richtung Norden in 20 km Höhe zu erkennen und liegt bei etwa  $67^\circ\text{N}$ . Auch im VMR-Bild sieht man die erneute Anhebung der Isolinien, die aber nicht durch Aufstieg von Luftmassen verursacht wird, sondern durch den chemischen Abbau des Ozons.

### 4.3.3 Validation des FURM-Algorithmus

Der FURM-Algorithmus ist inzwischen umfangreich mit Messungen anderer Satellitensensoren und Sonden validiert worden (Hoogen, 1998; Bramstedt, 2001). Durch Vergleiche mit Ozonsondenmessungen in nördlichen Breiten zwischen  $45^\circ$  und  $80^\circ\text{N}$  für den Zeitraum von Juli 1996 bis Juni 1997 konnte nachgewiesen werden, dass die GOME-Ozonprofile im Allgemeinen gut mit den Sondenprofilen in der Stratosphäre übereinstimmen. Etwa 200 Sondenvergleiche zeigen eine mittlere quadratische Abweichung von unter 10%. Hierbei ist aber die prinzipiell relativ geringe Höhenauflösung des FURM-Algorithmus von mehr als 6km in Betracht zu ziehen (Hoogen et al., 1999b). Ozonsonden liefern bis etwa 30km Höhe zuverlässige Ergebnisse. Die Genauigkeit von Ozonsonden in der Stratosphäre liegt selber bei etwa  $\pm 6\%$  (Beekmann et al., 1994).

Weiterhin wurden für die Südhemisphäre Messungen des SAGE II-Experiments zum Vergleich mit FURM verwendet. Das *Stratospheric Aerosol and Gas Experiment* (SAGE) fliegt seit 1984 an Bord des *Earth Radiation Budget Satellite* (ERBS) und misst in solarer Okkultation Ozonverteilungen mit einer vertikalen Auflösung von 1 km bei einer Genauigkeit von etwa 10%. Die Monatsmittel beider Messungen zeigten Übereinstimmung im Rahmen von 10% für Höhen von 15 bis 35 km (Hoogen, 1998).

HALOE (*Halogen Occultations Experiment*) ist ein Instrument an Bord des *Upper Atmosphere Research Satellite* (UARS), welches 1991 gestartet wurde. Es misst die solare Strahlung in mehreren Infrarot-Kanälen zwischen  $9,22\mu\text{m}$  und  $10,42\mu\text{m}$  (Ozon:  $9,6\mu\text{m}$ ) ebenfalls in solarer Okkultation. HALOE kann 30 Messpunkte pro Tag bei Sonnenauf- und Untergang entlang schmaler Breitengradstreifen aufnehmen. Die vertikale Auflösung liegt bei etwa 2 km, die Genauigkeit in der Stratosphäre liegt je nach Höhe zwischen 8 und 18%. Die Vergleiche von FURM und HALOE (Bramstedt et al., 2000; Bramstedt, 2001) zeigen im Rahmen der Fehlergrenzen und in Anbetracht der Unterschiede von Beobachtungsgeometrie und Messzeitpunkt gute Übereinstimmung von unter 10% in der Stratosphäre zwischen 17 und 30 km, wobei die GOME-Messungen den Ozongehalt durchschnittlich um etwa 5% überschätzen.

Dass FURM den Gesamtzongehalt sehr gut wiedergibt, zeigen Vergleiche mit dem Netz von Dobson-Spektrometern und TOMS-Gesamtzonzon-

messungen. Hier konnten sehr große Datensätze mit kollozierten Pixel verglichen werden, die von 1996 bis 2000 reichen. Im Rahmen der Messgenauigkeit wurde eine sehr gute Übereinstimmung über alle Jahre mit Abweichungen von unter 2% für das Gesamtozon gefunden (Bramstedt, 2001).

**Teil II**

# **Atmosphäre**

## Überblick zu Teil II: Atmosphäre

In diesem Abschnitt wird in die Grundlagen der Atmosphärendynamik eingeführt und die im Rahmen der Arbeit entwickelten Modelle beschrieben.

- In *Kapitel 5* werden die atmosphärenphysikalischen Aspekte einläutert. Der vertikale Aufbau der Atmosphäre und die statischen und dynamischen Grundlagen werden erklärt. Hierzu werden Beispiele aus der Praxis verwendet. Das sind in erster Linie semi-globale Karten der Nordhemisphäre von atmosphärenphysikalischen Parametern, die für die Arbeit erzeugt wurden. Die für die Entwicklung der Ozonschicht wichtigen Transportprozesse, die allgemeine Zirkulation und der Einfluss von Wellen auf das Ozon, sowie der polare Wirbel in der winterlichen Stratosphäre werden beschrieben.
- Das für die Arbeit entwickelte Verfahren FUDD zur Berechnung von gemittelten Ozonprofilen und Absinkraten im polaren Vortex infolge diabatischer Prozesse wird in *Kapitel 7* vorgestellt. Die Bestimmung von Absinkraten ist notwendig für die Separierung von chemischen und dynamischen Ozonänderungen im Polarwirbel. Die Eingabeparameter für das Programm werden erläutert und auf mögliche Fehlerquellen eingegangen.
- Das Trajektorienmodell TANGO zur Bestimmung isentroper Luftbewegungen wird in *Kapitel 6* beschrieben und an Beispielen von Trajektorien vorgestellt. Die Bestimmung von Luftbewegungen ist notwendig für die Untersuchung von Ozon als dynamischen Tracer, für die Identifizierung des Ursprungs von Luftmassen beziehungsweise des Werdegangs, sowie insbesondere hier für die Quantifizierung von Austauschprozessen über den Vortexrand.

## 5 Die Erdatmosphäre

Die Atmosphäre umhüllt und schützt unseren Planeten und ist Bindeglied zwischen fester Erde und Vakuum des Weltalls. Die Erdatmosphäre besteht aus einem Gemisch an Gasen sowie flüssigen und festen Bestandteilen, wie beispielsweise Wasser (Wolken, Nebel), Eis (Schnee, Hagel), Staub und organische Substanzen (Pollen, Bakterien).

Die Zusammensetzung trockener Luft gliedert sich wie folgt. Neben molekularem Stickstoff ( $N_2$ ) mit einem Volumenmischungsverhältnis (Volume Mixing Ratio, VMR) von etwa 78,1 Volumen-% ist molekularer Sauerstoff ( $O_2$ ) mit 21 % das zweithäufigste Gas. Das Edelgas Argon mit 0,93 % und Kohlendioxid mit 0,036 % sind weitere Gase mit nennenswertem Anteil. Die anderen Gase der Atmosphäre treten nur in sehr geringen Mengen auf (Spurenstoffe). Hierzu gehören zum Beispiel Neon, Helium, Methan, Wasserstoff und Schwefeldioxid mit Volumenmischungsverhältnissen im ppmv- bis pptv-Bereich (ppmv: *Parts per Million*, pptv: *Parts per Trillion*).

Reiner Sauerstoff kommt in der Atmosphäre hauptsächlich in drei Formen vor. Atomarer Sauerstoff ist ab der mittleren Stratosphäre in kleinen Mengen zu finden. Während sich molekularer Sauerstoff  $O_2$  nahezu konstant vom Boden bis in große Höhen über 100 km erstreckt, nimmt O mit der Höhe stark zu und ist ab etwa 110 km Hauptbestandteil der Sauerstofffamilie, weil die sehr kräftige ultraviolette Strahlung das  $O_2$ -Molekül in großen Höhen aufbricht. Das dreiatomige Sauerstoff-Molekül Ozon ( $O_3$ ) hingegen zeigt ein ausgeprägtes Maximum im Volumenmischungsverhältnis in der Stratosphäre um etwa 35 km.

Um Änderungen in der Ozonverteilung auf allen Zeit- und Raumskalen verstehen zu können, benötigt man Kenntnis sowohl des chemischen Zustands als auch der Dynamik der Atmosphäre, insbesondere der Stratosphäre. Luftmassenbewegungen und chemische Prozesse in der Atmosphäre sind Forschungsgebiete der Meteorologie, die sich mit den physikalischen

Eigenschaften der Lufthülle - dem Wetter und dem Klima - befasst. Wetter ist hierbei definiert als der atmosphärische Zustand zu einem Zeitpunkt an einem Ort. Klima ist dagegen die Änderung des mittleren Zustands auf größeren Zeitskalen. Die empirische Klimaforschung ist aufgebaut auf langjährigen Wetterbeobachtungen und deren Auswertung. Ziel ist die Ableitung physikalischer Gesetzmäßigkeiten von atmosphärischen Bewegungen. Für Luftmassenbewegungen kann die diskrete molekulare Natur der Atmosphäre ignoriert und sie als kontinuierliches, fluides Medium betrachtet werden (Malberg, 1997; Warnecke, 1997). Die Meteorologie ist nicht auf die unmittelbare Umgebung des Menschen, die Wetterzone, beschränkt. Die Aerologie als Teilgebiet der Meteorologie befasst sich mit der Chemie und Physik der Atmosphäre vom Boden bis 40km Höhe, die Aeronomie mit der ab 40km Höhe.

Da die Atmosphäre für den Menschen im Hinblick auf die Versorgung mit Sauerstoff lebenswichtig ist, ist das Wechselwirkungssystem »Atmosphäre - Mensch« von besonderer Bedeutung. Nicht nur die Lufthülle mit ihren extremen Wettererscheinungen wirkt auf den Menschen, auch ändert der industrialisierte und sich vermehrende Mensch durch sein Wirken die Atmosphäre mit weitreichenden Konsequenzen für Chemie und Dynamik, wie sich herausstellt hat (World Meteorological Organization (WMO), 1999). Das System »Atmosphäre« ist Teil des dynamischen Systems Erde. Es bestehen Wechselwirkungen zu den anderen Teilen »feste Erde« und »Hydrosphäre«. Änderungen des atmosphärischen Zustands haben vor allem Auswirkungen auf die Hydrosphäre (Eintrag von Spurenstoffen, saurer Regen). Das Medium der Untersuchungen, die Atmosphäre, kann aber nicht wie im Labor präpariert und methodisch vermessen werden. Eine Trennung komplexer Vorgänge und Wechselwirkungsprozesse in der Atmosphäre ist so nur schwer möglich. In den folgenden Abschnitten soll in die physikalischen Grundlagen der atmosphärischen Statik und Dynamik eingeführt werden.

## 5.1 Die vertikale Struktur der Atmosphäre

Die vertikale Ausdehnung der Atmosphäre ist im Vergleich zum Radius der Erde klein. Einem Erdradius von ungefähr 6378km steht die Höhe der Homosphäre von etwa 120km gegenüber. Dies ist der Teil der Atmosphäre,

in dem sich die relativen Anteile der Gase nicht verändern und welcher im Vergleich zur Heterosphäre den weitaus größten Teil der Masse beinhaltet. Die vertikale Struktur physikalischer Parameter wie Druck und Temperatur ist für das Verständnis von Luftmassenbewegungen und von Ozonverteilungen, wichtig..

Unter der Annahme, dass Luft ein ideales Gas ist, gilt für die Lufthülle der Erde die allgemeine Gasgleichung. Der Zustand jedes Punkts der Atmosphäre wird durch die thermodynamischen Größen Druck  $p$  [hPa], Temperatur  $T$  [K], Luftdichte  $\rho$  [ $\text{kg m}^{-3}$ ] beziehungsweise spezifischem Volumen  $\alpha = 1/\rho$  [ $\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$ ] bestimmt:

$$p = \rho RT = \frac{RT}{\alpha}, \quad (5.1)$$

mit der speziellen Gaskonstanten  $R = 287,04 \text{ J K}^{-1} \text{ kg}^{-1}$  für trockene Luft. Diese Gleichung gilt, wenn keine Phasenumwandlung des Wasserdampfes stattfindet, also insbesondere in der relativ trockenen Stratosphäre.

Im statischen Fall, das heißt in Abwesenheit atmosphärischer Bewegungen, wird die Gravitationskraft durch die vertikale Komponente der Druckgradientenkraft ausgeglichen. Die hydrostatische Grundgleichung, die aus den allgemeinen Bewegungsgleichungen abgeleitet werden kann (Pichler, 1997), lautet

$$dp = -\rho g dz \quad (5.2)$$

mit der Schwerebeschleunigung  $g$  [ $\text{m s}^{-2}$ ] und der differentiellen Höhe  $dz$  [m].

Die Schwerebeschleunigung ist dabei eine Funktion der Höhe  $z$  und des Breitengrades  $\phi$  aufgrund der unterschiedlichen Massenverteilung der Erdkugel. Zur Bestimmung der Schwerebeschleunigung  $g$  kann die empirische Formel (Roedel, 1992)

$$g(z, \phi) = 9,806 \times (1 - 0,0026 \cos 2\phi)(1 - 3,1 \cdot 10^{-7} z) \quad (5.3)$$

verwendet werden.

Das Geopotential  $d\Phi = -g dz$  [ $\text{J kg}^{-1} = \text{m}^2 \text{s}^{-2}$ ] kann auch als vertikale

Koordinate für das System Erde–Atmosphäre verwendet werden. Damit lässt sich die hydrostatische Gleichung (5.2) in Kombination mit der Gasgleichung (5.1) schreiben als

$$d\Phi = -RT dp/p. \quad (5.4)$$

Die Variation von Geopotential und Druck hängt damit nur von der Temperatur  $T$  und nicht vom Ort ab. Unter Einführung der geopotentiellen Höhe  $h \equiv \Phi(z)/g_0$  [gpm] mit  $g_0 = 9,81 \text{ m s}^{-2}$  kann die Dicke  $\Delta h = h_1 - h_0$  einer atmosphärischen Schicht zwischen zwei Druckflächen (hypsometrische Formel) abgeleitet werden als

$$\Delta h = H \ln(p_1/p_0) \quad (5.5)$$

mit einer mittleren Skalenhöhe  $H \equiv R\langle T \rangle/g_0$  und der mittleren Temperatur  $\langle T \rangle$  der Schicht zwischen den Druckflächen  $p_1(h_1)$  und  $p_0(h_0)$ . Die Dicke einer Schicht zwischen zwei isobaren Grenzflächen ist also proportional zur mittleren Temperatur in dieser Schicht. Der Druck nimmt also in einer kalten Schicht schneller ab als in einer warmen. Die geopotentielle Höhe entspricht näherungsweise der geometrischen Höhe in Troposphäre und Stratosphäre (Andrews et al., 1987), erst in größeren Höhen weichen beiden Größen signifikant voneinander ab.

Nimmt man den Bodendruck mit  $p_0 = 1000 \text{ hPa}$  an, so lässt sich aus Gleichung (5.5) die allgemein bekannte Form der barometrischen Höhenformel ableiten als

$$p(h) = p_0 e^{-h/H}, \quad (5.6)$$

mit der die exponentielle Abnahme des Drucks mit der Höhe in Abhängigkeit von der Skalenhöhe beschrieben wird. Für Studien der mittleren Atmosphäre kann eine Skalenhöhe  $H = 7 \text{ km}$  angenommen werden, was einer mittleren Temperatur von  $\langle T \rangle \approx 240 \text{ K}$  entspricht (Andrews et al., 1987).

### 5.1.1 Das allgemeine Temperaturprofil

Die höchsten Temperaturen in der Troposphäre werden allgemein in Bodennähe erreicht. Wenn warme, leichte Luft unter kühler, schwerer Luft liegt,

kann es zu Konvektionsprozessen kommen. Da Luft jedoch komprimierbar ist und der Druck mit der Höhe abnimmt, ist das konvektive Verhalten nicht so stark ausgeprägt, wie man vermuten könnte. Denn das aufsteigende Gas expandiert und kühlt dabei ab. Für den trockenadiabatischen Temperaturgradienten  $\Gamma_d$  (ohne Kondensationsprozesse), der das Temperaturgefälle in der Troposphäre mit der Höhe beschreibt, gilt die Beziehung

$$\Gamma_d \equiv g/c_p = -dT/dz, \quad (5.7)$$

die aus dem 1. Hauptsatz der Thermodynamik abgeleitet werden kann.  $c_p$  ( $= 1004 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) ist die spezifische Wärmekapazität bei konstantem Volumen.  $\Gamma_d$  ist annähernd konstant mit der Höhe. Die Gleichung gilt, wenn die potentielle Temperatur höhenunabhängig ist (Holton, 1992) (siehe auch Abschnitt 5.1.2).

Der 1. Hauptsatz der Thermodynamik  $dU = dQ - pdV$  besagt, dass eine Änderung der inneren Energie  $dU$  eines Systems gleich der aufgenommenen Wärme  $dQ$  und der äußeren am System verrichteten Arbeit  $dW = pdV$  ist. Mit Gleichung 5.7 kann man untersuchen, inwieweit die Atmosphäre stabil geschichtet ist. Ist die vertikale Temperaturänderung größer als  $\Gamma_d$ , setzt Konvektion ein. Bei kleinerer Temperaturänderung ist die Atmosphäre stabil geschichtet. Luftpakete, die in stabil geschichteter Atmosphäre ausgelenkt werden, können bei adiabatischer Anregung Schwingungen um die Ruhelage durchführen. Unter dem Einfluss von Wasserdampf, der bei Abkühlung kondensieren kann, kompliziert sich die Betrachtung, man verwendet dann den feucht-adiabatischen Temperaturgradienten  $\Gamma_s$ <sup>1</sup>. Für eine genauere Betrachtung sei auf die Textbücher verwiesen (Roedel, 1992; Warnecke, 1997).

In der Troposphäre nimmt die Temperatur mit etwa  $6,5 \text{ K km}^{-1}$  ab. Strahlungsprozesse bestimmen hier den Temperaturverlauf, eine Strahlungskühlung kann durch Abstrahlung im Infraroten durch Wasserdampf auftreten, was eine Wärmesenke in der Höhe darstellt. Die höchsten Temperaturen in der Troposphäre treten in Bodennähe auf, weil der Boden durch Strahlungsabsorption aufgewärmt wird und die Wärme an die Luft abgibt. Das Temperaturminimum wird thermische Tropopause genannt (siehe Abschnitt 5.1.4)

---

<sup>1</sup> Abnahme der Temperatur bei Aufstieg oder Absinken eines mit Wasserdampf gesättigten Luftpakets.

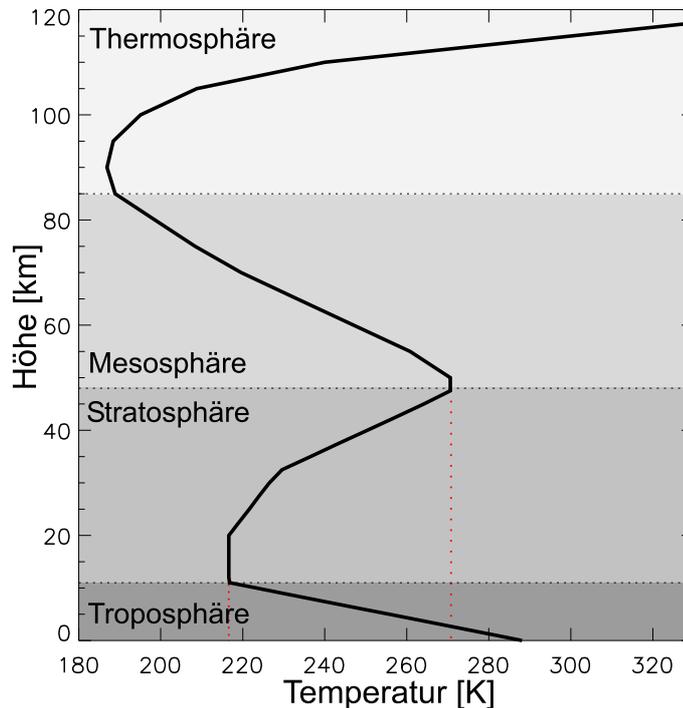


Abbildung 5.1: Mittlerer vertikaler Temperaturverlauf in der Atmosphäre für mittlere Breiten. Die Temperatur  $T$  [K] ist als Funktion der Höhe  $z$  [km] zwischen Boden und 120 km Höhe dargestellt. Eingezeichnet ist ebenfalls die Schichteinteilung der Atmosphäre, die sich aufgrund des Temperaturverhaltens ergibt. Die Daten entstammen der U.S. Standard-Atmosphäre (1976).

und liegt je nach Saison, Breitengrad und dynamischer Situation zwischen etwa 8 und 16 km Höhe.

Die Troposphäre (trope [griech.] = Wendung) enthält etwa 80 % der Luftmasse und fast allen Wasserdampf sowie Wolken (Gill, 1982). Darüber beginnt die Stratosphäre, eine Inversionsschicht, die von der Stratopause in etwa 45 bis 55 km Höhe abgeschlossen wird. In die Stratosphäre nimmt die Temperatur wieder mit der Höhe aufgrund von Absorptionsprozessen des Lichts durch Ozon und der damit verbundenen Umwandlung in Wärme zu. Die vertikale Mischung in der Stratosphäre ist wegen des Temperaturgradienten weitestgehend unterdrückt, es kommt zu einer Schichtung (Stratifizierung<sup>2</sup>). Ein vertikal bewegtes Luftpaket, das keine anderweitige Wärmeän-

<sup>2</sup> Die Stratosphäre verdankt dieser Eigenschaft der Schichtung ihren Namen (lat. stratum = Schicht).

derung erfährt, hat in der Stratosphäre den trockenadiabatischen Temperaturgradienten  $\Gamma_d = 9,8 \text{ K km}^{-1}$ . Über der Stratopause folgen noch die Mesosphäre bis etwa 80 bis 90 km (Mesopause) mit abnehmenden Temperaturen und die Thermosphäre, in der die Temperatur infolge der Absorption von kurzwelliger Strahlung durch  $\text{N}_2$  und  $\text{O}_2$  stark zunimmt. Der Temperaturverlauf als Funktion der Höhe ist in Abbildung 5.1 für ein klimatologisches Szenario (US-Standardatmosphäre 1976) dargestellt.

### 5.1.2 Die potentielle Temperatur als Höhenkoordinate

Isentrope oder adiabatisch reversible Prozesse sind solche, bei denen die Entropie eine konservative Größe ist. Weder Wärme noch Masse werden dabei mit der Umgebung ausgetauscht. Zur Herleitung einer wichtigen atmosphärischen Größe, der potentiellen Temperatur  $\theta$  kann man, ausgehend vom 2. Hauptsatz der Thermodynamik, die Entropieänderung  $dS$  mit Hilfe der Zustandsgleichung für ideale Gase 5.1 schreiben als

$$dS \equiv \frac{\delta Q_{\text{rev}}}{T} = c_p(dT/T) - R(dp/p). \quad (5.8)$$

Für adiabatische Vorgänge ist die Änderung der reversiblen Wärme  $\delta Q_{\text{rev}}$  gleich Null und somit auch die Entropieänderung  $dS = 0$ . Integration und Umstellen der Gleichung ergibt dann

$$\frac{T_0}{T} = \left( \frac{p_0}{p} \right)^{\frac{R}{c_p}}. \quad (5.9)$$

Für einen Bodendruck  $p_0 = 1000 \text{ hPa}$  erhält man daraus die potentielle Temperatur  $\theta \equiv T_0$  mit

$$\theta \equiv T \left( \frac{p_0}{p} \right)^{\kappa}, \quad (5.10)$$

wobei der Faktor  $\kappa = R/c_p = 0,286$  ist.

Die potentielle Temperatur ist jene, die ein Paket trockener Luft eines Druckes  $p$  und einer Temperatur  $T$  haben würde, wenn es unter adiabatisch

reversiblen Bedingungen auf Bodendruck gebracht wird. Da sich bei adiabatischen Vorgängen die Entropie nicht ändert, werden sie auch als isentrope Prozesse bezeichnet und Adiabaten als Isentropen. Man kann die potentielle Temperatur als Höhenkoordinate verwenden, wenn sie eine stetig mit der Höhe steigende Funktion ist. Diese Forderung gilt im Allgemeinen für die Stratosphäre. Unter Verwendung isentroper Höhenkoordinaten haben dann Vertikalbewegungen infolge adiabatischer Prozesse keinen Einfluss auf die Höhe.

Man kann durch Einsetzen der hydrostatischen Gleichung (5.2) die potentielle Temperatur auch schreiben als:

$$\theta = T \exp(\kappa z/H) \quad (5.11)$$

Für die winterliche Stratosphäre in der Arktis liegt beispielsweise das  $\theta$ -Niveau von 475 K bei etwa 19,6 km. Als Faustregel gilt, dass die potentielle Temperatur [K] geteilt durch 25 ungefähr die Höhe [km] ergibt. Dies lässt sich direkt aus Gleichung (5.11) ableiten.

Die Atmosphäre kann anhand der Flächen potentieller Temperatur in Überwelt (*Overworld*), Mittelwelt (*Middleworld*) und Unterwelt (*Underworld*) eingeteilt werden. In der »Overworld« liegen die isentropen Flächen insgesamt in der Stratosphäre, was für Temperaturen über etwa 380 K gegeben ist. In der »Middleworld« kreuzen die Isentropen die Tropopause von der nordpolaren Stratosphäre in die äquatoriale Troposphäre. Sie erreichen dabei jedoch nicht den Boden in den Tropen. Der stratosphärische Teil der Mittelwelt wird auch unterste Stratosphäre (*lowermost stratosphere*) genannt (Holton et al., 1995). Die »Underworld«-Isentropen liegen insgesamt in der Troposphäre und enden in den Tropen auf dem Erdboden (Hoskins, 1991). Dies ist in Abbildung 5.3 dargestellt.

### 5.1.3 Die potentielle Vorticity

Atmosphärische Strömungen sind allgemein nicht wirbelfrei. Dieser Tatsache wird in der Wirbeldynamik durch Differentialgleichungen, den sogenannten Vorticity-Gleichungen, Rechnung getragen (Pichler, 1997). Die Er-

haltung der absoluten Vorticity  $\eta$  ist in kartesischen Koordinaten allgemein gegeben durch (Roedel, 1992)

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} + \text{div}_H(\eta \cdot \vec{v}) = \frac{1}{\rho} \text{rot}_z \vec{F}. \quad (5.12)$$

Die absolute Vorticity  $\eta = \zeta + f$  setzt sich aus der relativen Vorticity  $\zeta = \text{rot}_z \vec{v}_H$ , der Rotation des horizontalen Windgeschwindigkeitsfeldes  $\vec{v}_H = (v_x, v_y)$  und dem Coriolis-Parameter  $f$  zusammen. Die Erdvorticity, beschrieben durch den Coriolis-Parameter  $f$ , ist gegeben als  $f = 2\Omega \sin \phi$ . Das ist die senkrechte Komponente der Winkelgeschwindigkeit  $\Omega$  der Erdrotation, wobei  $\phi$  der Zenitwinkel beziehungsweise der Breitengrad ist. Alle äußeren Kräfte in Gleichung (5.12) sind im Vektor  $\vec{F}$  zusammengefasst. Die zu einer isobaren Fläche vertikale Komponente der relativen Vorticity  $\zeta$  ist das Maß für den Spin eines Fluidpakets im Verhältnis zum zur Erde fixierten Koordinatensystem:

$$\zeta = \frac{\partial v}{\partial x} - \frac{\partial u}{\partial y}. \quad (5.13)$$

Die zonale Windkomponente ist  $u$ , die meridionale  $v$ , für die kartesischen Koordinaten  $x$  und  $y$ .

Auf Flächen konstanten Drucks kann die Ertel'sche potentielle Vorticity  $PV$  approximiert werden als (Lait, 1994; Nash et al., 1996):

$$PV = -g\eta \frac{\partial \theta}{\partial p}, \quad (5.14)$$

mit der potentiellen Temperatur  $\theta$ , dem Druck  $p$  und der Gravitationsbeschleunigung  $g$ . Der Term  $\partial \theta / \partial p$  beschreibt die Stabilität der Luftsäule, im synoptischen Skalenbereich gilt für stabile Schichtung  $\partial \theta / \partial p < 0$ . Der  $\partial \theta / \partial p$  Term variiert exponentiell mit der Höhe.

Als Einheit der potentiellen Vorticity wird  $1 \text{ PVU} = 10^6 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ kg}^{-1} \text{ K}$  verwendet (PVU: *Potential Vorticity Units*). Die potentielle Vorticity  $PV$ , auch Ertel'sche  $PV$  genannt, ist eine Erhaltungsgröße in reibungsfreien, baroklinen, divergenzbehafteten Atmosphären. In Abwesenheit diabatischer Prozesse und nicht-konservativer Kräfte, wie den Reibungskräften, wird also

die  $PV$  erhalten und der Fluss von Materie über die Isolinien der  $PV$  auf isentropen Flächen ist unterbunden.

Statt der  $PV$  kann man die modifizierte  $PV$  ( $MPV$ ) verwenden, um in guter Näherung die starke Höhenabhängigkeit der  $PV$  zu eliminieren und auch für andere Höhen die für 475 K gleichen Grenzwerte gelten zu lassen. Die  $MPV$  kann aus Gleichung (5.14) abgeleitet werden, wenn man die Definitionsgleichung der potentiellen Temperatur (5.10) einsetzt (Lait, 1994). Die  $MPV$  normiert auf 475 K ist gegeben durch:

$$MPV = PV \left( \frac{475,0}{\theta} \right)^{4,5} . \quad (5.15)$$

#### 5.1.4 Die Tropopause

Die Tropopause als Region des Austauschs von Luftmassen zwischen Troposphäre und Stratosphäre ist gerade in den letzten Jahren in den Aufmerksamkeitsbereich der Forschung gerückt. Obwohl die Stratosphäre mittlerweile recht gut erforscht wurde, ist die Verbindung von Stratosphäre und Troposphäre hinsichtlich des Spurenstoffaustauschs nicht genau bekannt. Untersuchungen der Korrelation zwischen globaler Ozonabnahme und Änderung der Tropopausenhöhe sind beispielsweise ein wichtiger Teilbereich der heutigen Atmosphärenforschung (Hoinka et al., 1996; Steinbrecht et al., 1998). Aus den Trends troposphärischer Parameter wie der vertikalen Temperaturverteilung und des Tropopausendrucks kann der dynamische Beitrag auf die Variabilität des stratosphärischen Ozons global abgeschätzt werden (Hood et al., 1999; Weiss, 2000).

Die Tropopausenhöhe ist durch die globale Verteilung der solaren Einstrahlung und den damit verbundenen konvektiven Prozessen in der Troposphäre bestimmt. Weil die Bodenerwärmung in den Tropen am größten ist, ist mehr Wasserdampf in der Troposphäre zu finden und die Höhe der konvektiven Anpassung ist deshalb größer. Die Obergrenze der Wasserdampfsphäre bestimmt so die Höhe der Tropopause. Die Strahlungskühlung durch Infrarotabstrahlung des Wasserdampfs stellt dabei die Wärmesenke in der Höhe dar.

Weiterhin gibt es in der Stratosphäre eine ständige mittlere meridionale

Zirkulation von Luftmassen, durch die Luft in den Tropen auf- und in den Extratropen absteigt. Durch die Produktion von Ozon in den Tropen und dem folgenden Transport in Richtung Pol wird die Breitenverteilung der Strahlungsheizung beeinflusst. Beide Effekte sind eng gekoppelt und führen zur Erhöhung der Tropopause in den Tropen und zur Absenkung in den Extratropen. Das Gefälle der Tropopause ist am stärksten in mittleren Breiten in der Nähe des Subtropenjets. Subtropenjets entstehen als Folge der Drehimpulserhaltung (Roedel, 1992). Die exakte Lage des Jets ist durch troposphärische Wettersysteme bestimmt.

Die Auswertung des ECMWF-ERA15 Datensatzes<sup>3</sup> zeigt folgende Ergebnisse für mittlere meteorologische Parameter. Die Temperatur der Tropopause hat mit circa 195 K ihr Minimum am Äquator und steigt in mittleren Breiten bis auf 218 K an, um zu den Polen insbesondere im Süden (210 K) wieder abzunehmen. Die potentielle Temperatur  $\theta$  [K] variiert zwischen Tropen (etwa 370 K) und polaren Regionen (etwa 300 K) um circa 70 K. Die Höhe der Tropopause  $z$  [km] hat ihr Maximum mit etwa 15,5 km in den Tropen und nimmt zu den Polen auf etwa 9 km ab. Die stärksten horizontalen Gradienten für alle untersuchten Parameter treten in der tropischen Region um  $\pm 30^\circ$  auf. Zwischen der mittleren Tropopausenhöhe und der troposphärischen Temperatur existiert eine positive Korrelation (Hoinka, 1999). Die Tropopause der südlichen Hemisphäre hat einen stärkeren zonalen Charakter. Auf der Nordhalbkugel entwickeln sich durch die Kontinente Wellenmuster mit Wellenzahlen von 2 und 4. Eine Wellenzahl von 1 bedeutet, dass in einem meridionalen Schnitt die entsprechende Konturlinie einer geophysikalischen Größe zweimal gekreuzt wird. Die atlantischen und pazifischen Regionen der Sturmbahnen (*storm tracks*) sind mit starken Standardabweichungen des Tropopausendrucks assoziiert.

Da die Tropopause keine sichtbare, direkt messbare Grenze zweier Sphären darstellt, sind speziellere Verfahren zur Bestimmung der Tropopausenhöhe üblich. Die mittlere globale Höhe der Tropopause ist hauptsächlich durch die Balance zwischen der Menge stratosphärischen Ozons, der Bodentemperatur und der vertikalen Temperaturverteilung der Troposphäre bestimmt. Wasserdampf und Wolken spielen dabei in der Temperaturverteilung eine wichtige Rolle (Hoinka et al., 1996; Hoinka, 1999). Man kann

---

<sup>3</sup> ECMWF Re-Analysis (1979–1993): <http://wms.ecmwf.int/research/era/>

zwischen verschiedenen Typen der Tropopause nach der Bestimmungsmethode unterscheiden (Hoinka, 1997).

Die Definition der thermische Tropopause ist die allgemein Bekannteste. Die Höhe wird aus der Differenz des Temperaturgradienten der stratosphärischen und troposphärischen Luft berechnet. Die thermische Tropopause ist definiert als die Fläche, auf der der vertikale Temperaturgradient kleiner als  $2 \text{ K m}^{-1}$  für eine vertikale Strecke von mindestens 2 km wird (Hoinka, 1998).

Die dynamische Tropopause wird dagegen über die potentielle Wirbelstärke (siehe Abschnitt 5.1.3) bestimmt. Nach WMO (World Meteorological Organization, 1985) kennzeichnet ein Wert von 1,6 PVU den Übergang von Troposphäre und Stratosphäre. Neuere Untersuchungen zeigen, dass dieser Wert zu klein gewählt wurde (Hoerling et al., 1991; Dethof et al., 2000). Hoinka (1999) verwendet einen Wert von 3,5 PVU, um die Diskrepanzen zwischen der dynamischen und thermischen Tropopause zu minimieren. Die dynamische Definition kann nur in den Extratropen angewendet werden, weil in den Tropen die *PV*-Flächen nahezu vertikal verlaufen. Hier wird dann die thermische Definition der Troposphäre verwendet. Der Übergang erfolgt für Breitenkreise zwischen  $19^\circ$  und  $36^\circ$ , wo ein gewichtetes Mittel beider Verfahren verwendet werden kann (Hoinka, 1999). Für Untersuchungen in mittleren Breiten kann also die dynamische Tropopause gut verwendet werden.

Die Tropopausenhöhe in der Nordhemisphäre ist in Abbildung 5.2 für den 2. April 1997 dargestellt. Der Einfluss warmer Luft aus subtropischen Gefilden Richtung Norden geht mit einer hohen Tropopause einher und ist sowohl über dem Nordatlantik als auch über dem Ostpazifik zu sehen. Gebiete niedriger Tropopause korrelieren dabei mit Gebieten hohen Gesamtzons (siehe Abbildung 5.4). Im Bereich des polaren Vortex treten sehr niedrige Tropopausen von unter 8 km auf, in Richtung Pol steigt die Tropopause wieder auf etwa 10 km an.

## 5.2 Transportprozesse in der Atmosphäre

In der atmosphärischen Dynamik gelten die gleichen Erhaltungssätze von Impuls, Masse und Wirbelstärke, die aus der klassischen Mechanik bekannt

### Dynamische Tropopause [km] 97/04/02

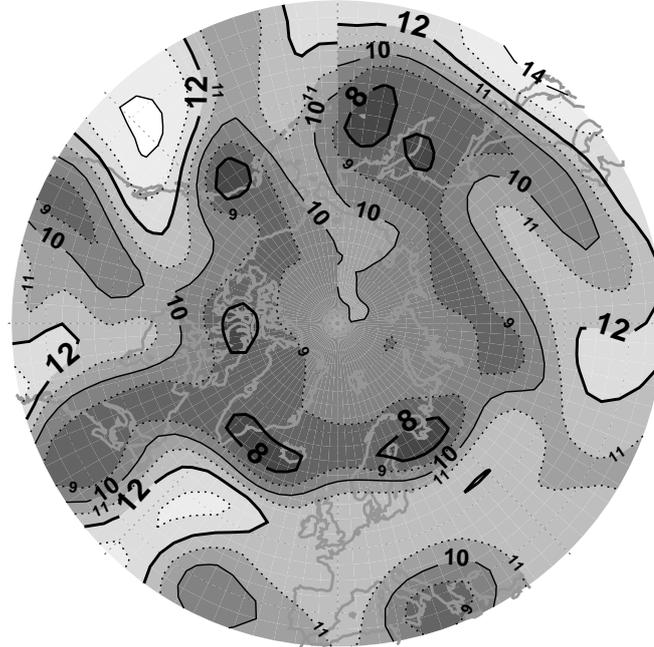


Abbildung 5.2: Höhe der dynamischen Tropopause [km] auf der Nordhalbkugel am 2. April 1997 berechnet aus den UKMO-Temperatur- und *PV*-Feldern. Die Tropopause ist die Fläche, auf der die potentielle Vorticity einen Wert von 3,5PVU annimmt. Die Konturlinien haben einen Abstand von 1 km. Eine niedrige Tropopause ist durch dunkle Grautöne markiert, eine hohe Tropopause durch helle Grautöne.

sind. Wirkende Kräfte sind Schwerkraft, Druckgradientkraft, Coriolis-Kraft, sowie Reibungskräfte. Aus der Balance von Druckgradienten- und Coriolis-Kraft entsteht der geostrophische Wind, der unter Vernachlässigung von Reibungskräften entlang von Isobaren weht. Seine Geschwindigkeit ist abhängig von der Stärke des Druckgradienten, der Dichte der Luft, sowie dem Breitengrad. Unter Einfluss von Reibungskräften ändert sich die Windrichtung bezüglich des Druckgradienten als Funktion der Erdrauhigkeit.

Bewegungen der Atmosphäre werden allgemein durch die Euler-Bewegungsgleichung eines Luftpartikels (-Paket) beschrieben, in der alle Kräfte, die auf das Paket der Dichte  $\rho$  wirken, bilanziert werden:

$$\rho \frac{d\vec{v}}{dt} = -\nabla p - \rho \nabla \Phi + 2\rho[\vec{v} \times \vec{\Omega}] + \vec{F}_R. \quad (5.16)$$

Hierbei ist  $\vec{v}$  die Geschwindigkeit des Luftpakets,  $\Phi$  das Geopotential,  $\Omega$  die Erdrotation und  $\vec{F}_R$  die Luftreibungskraft.

Neben der Impulserhaltung muss auch die Erhaltung der Masse gewährleistet sein, dies kommt in der Kontinuitätsgleichung zum Ausdruck:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \rho \nabla \cdot \vec{v} + \vec{v} \nabla \rho = 0. \quad (5.17)$$

Bei den meisten horizontalen Luftbewegungen kann Luft als inkompressibel angenommen werden, so dass räumliche und zeitliche Dichteveränderungen vernachlässigbar sind. Dann gilt die einfache Kontinuitätsgleichung  $\nabla \cdot \vec{v} = 0$ . Wenn man in der Dynamik der Atmosphäre trotzdem von Konvergenz beziehungsweise Divergenz spricht, so ist eine horizontale gemeint, die durch eine vertikale Divergenz beziehungsweise Konvergenz ausgeglichen wird.

### 5.2.1 Die allgemeine planetare Zirkulation

Die planetare Zirkulation wird durch das dreidimensionale Zusammenspiel solarer Einstrahlung und dynamischen Prozessen, welche die Struktur der Temperatur- und Windverteilungen bestimmen, angetrieben. Das Temperaturfeld der Stratosphäre entwickelt sich durch eine Balance zwischen Strahlungs- und dynamischer Heizung beziehungsweise Kühlung. Die dynamische Heizung wird von vertikalen (diabatischen) Bewegungen verursacht, die durch die jährlich variierende Verteilung der Solarstrahlung entstehen (World Meteorological Organization (WMO), 1999).

Im Mittel entspricht die Solarenergie, die von der Atmosphäre und der Erdoberfläche absorbiert wird, der infraroten Strahlungsenergie, die in den Weltraum abgestrahlt wird. Im Jahresmittel ist die solare Heizung aber stark vom Breitengrad abhängig. Das Maximum liegt am Äquator, das Minimum an den Polen. Im Gegensatz hierzu ist die infrarote Strahlung nur schwach breitengradabhängig. So gibt es einen Strahlungsüberschuss in den Tropen und ein Defizit in den Polarregionen. Hierdurch wird ein Temperaturgradient zwischen Pol und Äquator induziert. Der sich aufgrund der geostrophischen Balance ausbildende Westwind ist nicht stabil. Die entstehenden baroklinen Wellen (siehe Abschnitt 5.2.2) übernehmen den polwärtigen Wärmetransport und führen so zu einer Verringerung des Temperaturgefälles.

Die Atmosphäre kann somit als Wärmekraftmaschine betrachtet werden (Holton, 1992), in der Nettowärme in den Tropen bei relativ hohen Temperaturen absorbiert und bei relativ tiefen Temperaturen in den Extratropen abgegeben wird. Potentielle Energie, gewonnen aus der Strahlung, wird teilweise in kinetische umgewandelt, um die Zirkulation gegen Reibungsverluste aufrecht zu erhalten.

Stratosphäre und Troposphäre sind durch die vertikale Fortpflanzung großskaliger Wellen dynamisch gekoppelt. Die allgemeine Zirkulation der Winterstratosphäre wird primär von großskaligen Störungen, die in der Troposphäre entstehen, kontrolliert. Ohne solche aufsteigenden Wellen wäre die Winterstratosphäre viel näher am weitaus kälteren Strahlungsgleichgewicht. Die Impulsübertragung durch die Wellen induziert eine mittlere meridionale Zirkulation (Chen, 1995).

Das große meridionale Zirkulationsmuster der mittleren Atmosphäre wird Brewer-Dobson-Zirkulation<sup>4</sup> genannt (Brewer, 1949; Dobson, 1956; Andrews et al., 1987). Die Zirkulation stellt die mittlere meridionale Komponente des allgemeinen globalen Luftmassenaustauschs dar. Luft wird durch solare Strahlung in den Tropen erwärmt und steigt über die Tropopause in die Stratosphäre auf. Sie wird dann Richtung Winter-Pol transportiert und sinkt durch Abkühlung in den Polargebieten der Winter-Hemisphäre wieder ab. Dieser Abkühlungsvorgang ist der eigentliche Motor der Brewer-Dobson-Zirkulation (Holton et al., 1995). Er beeinflusst sowohl die Tropopausenhöhe als auch die globale Ozonverteilung. Tropopausenhöhe und stratosphärisches Ozonmaximum sind im Vergleich zu den Tropen nach unten verschoben. Je nach Lage des Absinkens kann diese Luft in der untersten Stratosphäre in Polnähe verbleiben oder wieder entlang der Isentropen in die Troposphäre verbracht werden. Man spricht aufgrund des Strahlungsantriebs auch von diabatischer Zirkulation<sup>5</sup>.

Da die meridionale Zirkulation aber stärker ist, als es sich aus den Heizraten am Äquator und den Polen ableiten lässt, spielen weitere Mechanismen eine wichtige Rolle. Aus heutiger Sicht wird der horizontale Transport von

---

4 Dobson hat aufgrund der Ozonverteilung, Brewer aufgrund der Wasserdampfverteilung auf die Art der Zirkulation geschlossen.

5 Stratosphärische Transportprozesse kann man am besten in isentroper Form betrachten. Man unterscheidet dabei zwischen adiabatischen Bewegungen entlang der Isentropen und diabatischen Bewegungen senkrecht zu den Isentropen.

Luftmassen aus den Tropen in mittlere Breiten durch Wellenbewegungen verursacht (Holton et al., 1995). Man spricht von einer wellengetriebenen extratropischen Pumpe (*wave-driven extratropical pump*).

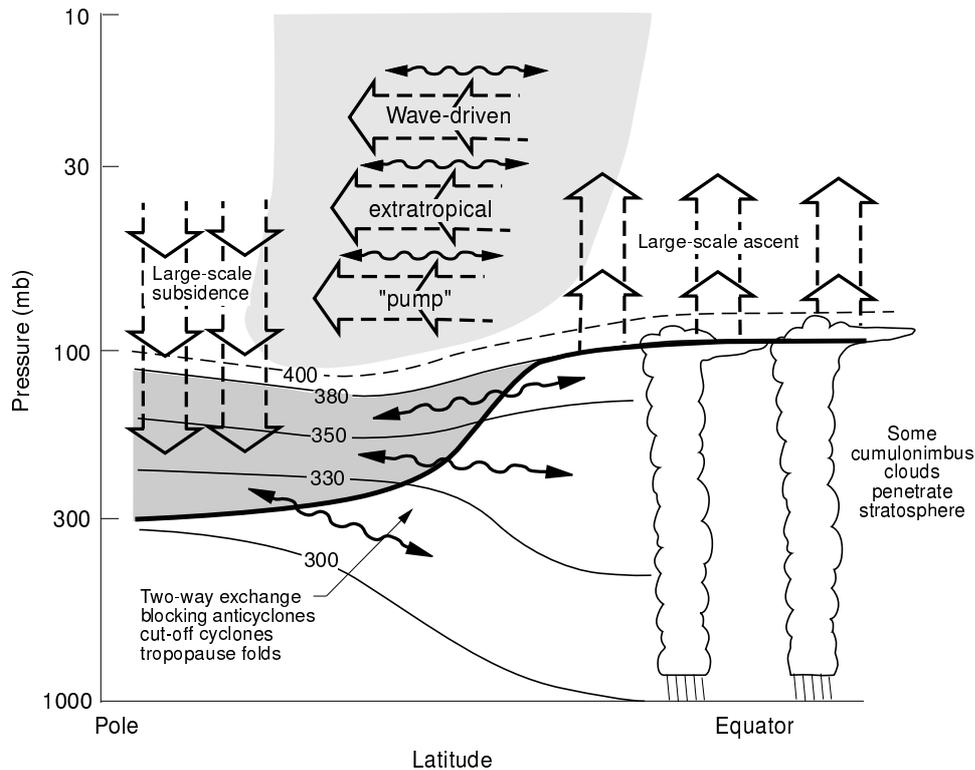


Abbildung 5.3: Darstellung der globalen meridionalen atmosphärischen Zirkulation als Funktion von Breitengrad und Druck [mbar]. Die dicke Linie markiert die Tropopause, die zum Pol abfällt. Die dünne, gestrichelte Linie ist die potentielle Temperaturfläche von 400 K, die komplett in der Stratosphäre liegt. Die dünnen durchgezogenen Linien sind Isentropen, die im grauen Bereich in der Stratosphäre und zum Äquator hin in der Tropopause liegen *Lowermost Stratosphere*. Abbildung entnommen aus Holton et al. (1995).

In Abbildung 5.3 ist schematisch die großskalige Zirkulation der Atmosphäre in Abhängigkeit von Breitengrad und Druckniveau dargestellt. Die dicke schwarze Linie stellt die mittlere Tropopause dar. In den Tropen in Äquatornähe kommt es infolge der starken solaren Einstrahlung zur Bildung hochreichender Cumulonimbuswolken, die bis in die Stratosphäre reichen können. In der tropischen Stratosphäre existiert ein weitreichendes Gebiet,

indem Luftmassen erwärmt werden und aufsteigen. Die aufsteigenden Luftmassen werden über einen wellengesteuerten Pumpmechanismus von den Extratropen in Richtung Pol gelenkt, wo infolge mangelnder Sonneneinstrahlung und Auskühlung im Winterhalbjahr ein großflächiges Absinken stattfindet. Im grauschattierten Bereich der untersten Stratosphäre (Lowermost Stratosphere) kommt es über Tropopausenfaltungen und blockierende Antizyklonen zu einem Austausch stratosphärischer und troposphärischer Luftmassen. Neben der tropischen Verbindung von Troposphäre und Stratosphäre über die Brewer-Dobson-Zirkulation gibt es auch einen isentropen Transport über die Tropopause in mittleren Breiten (Dethof et al., 2000).

Die Bedeutung des Transports für die Bestimmung der Verteilung atmosphärischer Bestandteile hängt von der relativen Stärke von chemischer Lebensdauer und Transportgeschwindigkeit ab. Ist die Lebensdauer einer Substanz viel kleiner als die dynamische Zeitkonstante, so ist die Substanz im photochemischen Gleichgewicht und Transportprozesse vernachlässigbar. Der Transport der Substanz bei langer chemischer Lebensdauer führt dagegen zur Reduktion einer photochemischen Gradientenbildung in der Atmosphäre.

Die planetare, extratropische Zirkulation besitzt sowohl einen saisonalen Zyklus als auch interhemisphärische Differenzen. Temperaturverteilungen in Januar und Juli ähneln sich, die Temperaturen sind auf der südlichen Winterhalbkugel jedoch tiefer als im Norden. Auch sind die Winde im Südwinter der Mesosphäre stärker ausgeprägt und reichen bis zu den polaren Nachtjets. Das nordhemisphärische Wintertemperaturfeld ist durch eine starke Abweichung von der zonalen Symmetrie charakterisiert.

Ein Beispiel für ein troposphärisches Strömungsmuster, das auch Auswirkungen auf die Stratosphäre hat, ist die nordatlantische Oszillation (NAO: *Northern Atlantic Oscillation*), welche die klimatischen Bedingungen im nordhemisphärischen Winter bestimmt. Dies ist eine großskalige sägezahnförmige Schwingung atmosphärischer Luftmassen zwischen subtropischen Hochdruck- und polaren Tiefdruckgebieten. Die NAO ist eine Klimafluktuation, die durch die Stärke der Westwindströmungen über dem Nordatlantik bestimmt wird. Der NAO-Index variiert von Jahr zu Jahr. Er ist definiert als die Druckdifferenz zwischen dem subtropischen Hochdruckgebiet nahe der Azoren und dem subpolaren Tiefdruckgebiet bei Island. Der Index ist ein Mittelwert über die Monate November bis März.

Ein positiver NAO-Index bedeutet ein stärkeres subtropisches Hochdruckzentrum und ein kräftigeres isländisches Tiefdruckgebiet. Die entstehende größere Druckdifferenz hat stärkere, häufigere Winterstürme zur Folge, die den atlantischen Ozean auf einer nördlicheren Bahn überqueren. Das führt zu wärmeren, feuchteren Wintern über Nordeuropa, während große Teile Südeuropas trocken bleiben, und trockenen, kalten Wintern über Nordkanada und Grönland. Der Osten der USA zeigt dann ebenfalls feucht-warme Winterbedingungen. Ein negativer NAO-Index ist bestimmt durch schwache subtropische Hoch- und isländische Tiefdruckgebiete. Das hat entgegengesetzte Wetterbedingungen in den einzelnen oben beschriebenen Gebieten zur Folge (Hurrell, 1996).

Die NAO korreliert mit dem Gesamt Ozon, indem es die Tropopausenhöhe insbesondere über Europa und dem Nordatlantik kontrolliert (Weiss, 2000). Die NAO hat damit auch einen dynamisch bedingten Einfluss auf Trends im Ozon.

### 5.2.2 Atmosphärische Wellen

Wellenbewegungen laufen in der Atmosphäre räumlich und zeitlich periodisch ab. Im komplexen Medium der Atmosphäre treten Störungen aller Art und damit vielfältige Wellenformen auf. In mittleren Breiten kommt es regelmäßig zu einer Änderung der Strömung von der meridionalen in die zonale Richtung. Die entstehende Strömungsmuster werden Rossby-Wellen genannt, die mit ihren Trögen und Keilen bei mittleren Wellenzahlen von 4 bis 6 rund um den Globus reichen. Die Auslenkung eines zirkularen Polarwirbels vom Pol in Richtung mittlere Breiten bedeutet somit eine Rossby-Welle der Wellenzahl 1 im *PV*-Muster, die Deformation beziehungsweise Elongation des Vortex ist durch eine zonale Wellenzahl von 2 gekennzeichnet. Die Wellenlänge eines Welle-1-Musters beträgt bei 60°N 20000 km.

Rossby-Wellen existieren aufgrund der Kombination von meridionalen Temperaturgradienten und Erddrehung und der damit verbundenen Corioliskraft. Sie entstehen aus einer baroklinen Zonalströmung, die in etwa parallel zu den Breitenkreisen verläuft. Die Zonalströmung wird bei meridionalen Temperaturgradienten oberhalb von etwa 3,5–6 K/1000 km instabil, so dass sich horizontale Rossby-Wellen bilden (Warnecke, 1997). Die auslen-

kende Kraft ist das Temperaturgefälle auf den Isobaren, die rückstellende Kraft kommt aus der Breitengradabhängigkeit der Coriolis-Kraft. Rossby-Wellen verlagern sich mit einer durchschnittlichen Geschwindigkeit von etwa 6 Längengraden pro Tag nach Osten und sind für die lokale Wetterentwicklung enorm wichtig.

Baroklin bedeutet, dass isobare und isotherme Flächen nicht parallel liegen. Der geostrophische Höhenwind ist hier nicht konstant, sondern ändert Stärke und/oder Richtung. Die Baroklinität ist Voraussetzung für die Bildung von Zyklonen und instabilen Wellenstörungen<sup>6</sup>.

Rossby-Wellen werden die planetaren Wellen genannt, wenn sie in der Troposphäre durch orographische Effekte<sup>7</sup> oder diabatische Variationen in der Wärmeverteilung infolge des Land-Ozean-Kontrastes entstehen. Diese Wellen sind stationär oder bewegen sich nur langsam nach Westen. Im Winter unter zonalen Westwindbedingungen können solche Wellen vertikal bis in die Stratosphäre aufsteigen. Dabei wird ihre Amplitude aufgrund des abnehmenden Luftdrucks größer. In der Stratosphäre übertragen diese Wellen ihren nach Westen gerichteten Impuls und schwächen damit den Polarnachtjet ab. Dieser Vorgang wird als Wellenbrechung bezeichnet und kann zum Phänomen der plötzlichen Stratosphärenenerwärmung (*stratospheric sudden warming*) führen, wodurch die polare Atmosphäre wärmer wird als die mittleren Breiten. Durch die Wellenbrechung kommt es zu einer irreversiblen meridionalen Mischung von Luftmassen. Die Stärke des Mischens hängt von der Stärke der Wellen ab, größeres Mischen findet wiederum vermehrt in der Nordhemisphäre in warmen Wintern statt.

In Abbildung 5.5 (links) sind die Isothermen der 500 hPa-Fläche dargestellt. Man sieht den nordwärts gerichteten Temperaturgradienten vom Warmen zum Kalten und eine mäandrierende Zone sehr starker horizontaler Temperaturgradienten (hyperbarokline Zone) (Warnecke, 1997). Die Temperaturverteilung korreliert mit der Verteilung der geopotentiellen Höhe, in Gebieten niedriger Temperatur liegt die 500 hPa Fläche nach der hypsometrischen Gleichung 5.5 tiefer als bei höheren Temperaturen. Vergleiche der geopotentiellen Höhe sowie der Temperatur mit der Tropopausenhöhe aus

---

6 <http://www.top-wetter.de/lexikon/lexikon.htm>

7 Das sind großskalige Merkmale in der Topographie wie das Himalaja-Gebirge und Rocky Mountains

Abbildung 5.2 zeigen ebenfalls eine starke Korrelation. Kalte troposphärische Gebiete korrelieren mit Gebieten niedriger Tropopause und damit hohen Ozons. Die Wellenstruktur, die in der Troposphäre entsteht, hat somit auch Auswirkungen auf das hauptsächlich stratosphärisch bestimmte Gesamtzozonfeld.

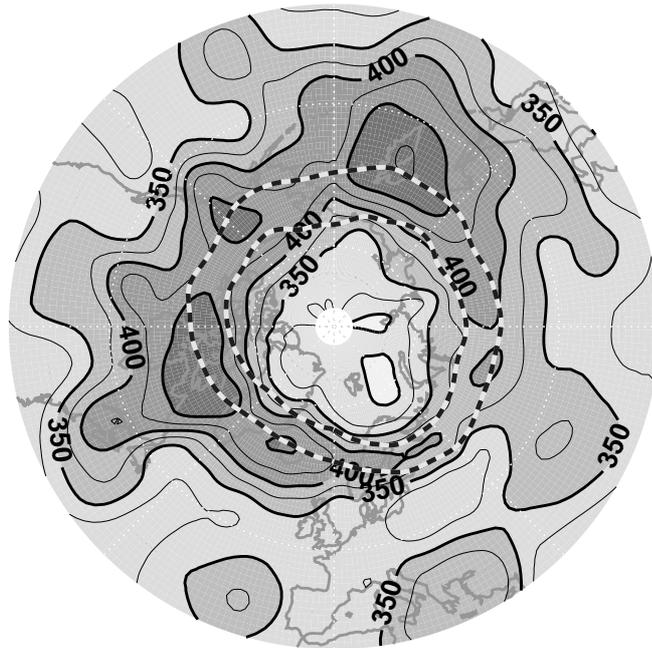


Abbildung 5.4: Gesamtzozon in der Nordhemisphäre, bestimmt aus GOME-Level 2 Daten des DLR-DFD für den 2. April 1997. Die GOME-Messungen jeweils eines Tages werden hierfür auf ein reguläres Gitter interpoliert. Messdatenlücken werden mit Hilfe eines Spline-Algorithmus aus benachbarten Werten berechnet und ergänzt. Die Glättung wird über 9 Datenpunkte berechnet. Der Abstand der Konturlinien beträgt 25 DU. Die Region des polaren Wirbelrand ist durch schwarz-weiße Konturlinien bei 30 und 42 PVU in der isentropen Höhe von 475 K dargestellt.

Abbildung 5.4 zeigt eine Karte der Gesamtzozonverteilung [DU], berechnet aus GOME-Messungen. Man sieht die durch heterogene Prozesse im Vortexinneren bedingte Ozonreduktion (siehe Abschnitt 8.3), welche mit dem Temperaturminimum in Abbildung 5.8 korrespondiert. Außerhalb des Vortex stimmen die Ozonmaxima sowohl mit den Maxima des Windfeldes als auch mit den Temperaturminima der 500 hPa-Fläche (Abb. 5.5) überein. Die höchsten Werte von über 450 DU treten bei den Temperaturmaxima der

475 K-Fläche auf. Ein dynamisch bedingtes Ozonminimum ist über Osteuropa zu sehen. Zudem tritt über dem östlichen Mittelmeer ein lokales Ozonmaximum auf, welches mit dem Temperaturminimum auf 500 hPa geographisch übereinstimmt. An diesem Bild erkennt man die Vermischung dynamischer und chemischer Prozesse in der Nordhemisphäre und den Einfluss troposphärischer, meteorologischer Phänomene wie Hoch- und Tiefdruckgebieten auf das Gesamt Ozon.

Zu beachten ist, dass die GOME-Messungen entsprechend den Orbits sequentiell erfolgen. Für die Darstellung werden immer die Orbits eines Tages zusammengefasst, eine zeitliche Interpolation wird nicht vorgenommen. Das bedeutet für die Tagesgrenze bei  $180^\circ$  Länge einen zeitlichen Versatz der Messungen von 24 Stunden. Bei zeitlich stark variablen Ozonfeldern können hier Sprungstellen auftreten, die trotz einer zweidimensionalen Glättung von 9 Datenpunkten noch sichtbar sind<sup>8</sup>. Dies ist ein fundamentaler Unterschied zu den assimilierten Datenfeldern von ECMWF und UKMO, die zu einem Zeitpunkt - im Allgemeinen 12:00 GMT- generiert werden. Diese Datensätze sind im Anhang B erklärt.

Ein weiteres Beispiel der Auswirkung planetarer Wellen sowie deren Brechung auf die horizontale Verteilung des Gesamt Ozons ist in Abbildung 9.9 zu sehen. Dargestellt ist dort die Bildung eines sogenannten Ozonminilochs über dem Nordatlantik/Mitteleuropa, welches außerhalb des Vortex liegt.

Es existieren auch barokline Wellen mit kürzeren Wellenlängen und höheren Wellenzahlen, die durch die vertikale Windscherung und die statische Stabilität der Stratosphäre kontrolliert werden. Werden diese Wellentypen instabil, kommt es zu einer Umwandlung von potentieller und innerer Energie in kinetische. An den Gebirgszügen der Erde und durch unterschiedliche diabatische Erwärmung infolge der Land-Meerverteilung der Nordhalbkugel werden solche Wellen ausgebildet, die für die arktische Dynamik wichtig sind.

Die troposphärisch erzeugten Störungen können unter geeigneten Bedingungen bis in die Stratosphäre aufsteigen. Hierzu sind relativ schwache Westwinde erforderlich, wie sie allgemein im Winter/Frühjahr auf der Nordhalbkugel vorherrschen. Im Sommer gibt es in der Stratosphäre allgemein

---

<sup>8</sup> Die Glättung wird durch Faltung des Datensatzes mit einer auf Eins normierten Kernel-Funktion vollzogen. Hierzu wird die IDL-Funktion CONVOL verwendet.

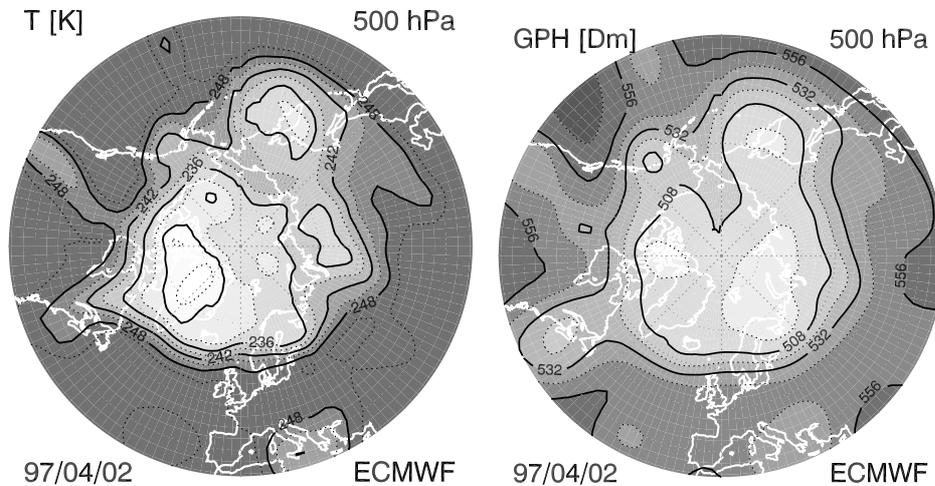


Abbildung 5.5: Temperaturverteilung [K] (oben) in der 500 hPa Ebene (etwa 5–6 km) vom 2. April 1997 zur Verdeutlichung der Baroklinität der Atmosphäre. Die Isothermen sind im Abstand von 3 K gezeichnet, hohe Temperaturen sind dunkler markiert. Die zugehörige geopotentielle Höhe [Dm] (unten) beschreibt die Druckverteilung der Nordhemisphäre. Der Abstand der Konturlinien beträgt 12 Dm, hohe GPHs sind dunkler markiert.

Ostwinde, weshalb solche Wellen nicht aufsteigen können. Die meridionale Zirkulation der Stratosphäre ist deshalb im Winter stark und im Sommer schwach. In der Stratosphäre werden die Amplituden von Wellen mit der Höhe und abnehmenden Druck größer. So können die Wellen instabil werden und schließlich brechen (Haynes et al., 1991).

Wellen kommen auf allen Längenskalen atmosphärischer Bewegung vor. Auf kleineren Skalen sind Schwerewellen mit Wellenlängen im Bereich von 10 km wichtig. Diese können zwischen internen und externen (Oberflächen-) Wellen unterschieden werden. Leewellen entstehen beim Überströmen von Gebirgen, wo Luftpartikel vertikal versetzt werden. Solche Wellen sind abhängig von der thermischen Schichtung und dem vertikalen Windprofil. Diese Schwereoszillationen erfolgen in einer stabil geschichteten Atmosphäre mit der Brunt-Vaisala Frequenz  $f$  [Hz]. Luftteilchen schwingen dabei mit

$$f^2 = \frac{g}{\theta_0} \frac{\partial \theta_0}{\partial z} > 0 \quad (5.18)$$

um ihre Ruhelage. Die Periode  $\tau_n = 2\pi/f$  [s] beträgt für troposphärische Standardwerte etwa 8 Minuten, also 480s. Leewellen können bis in die Stratosphäre reichen und zur Bildung von PSCs führen (siehe Abschnitt 8.3). Schwerewellen entstehen auch durch Störung an Diskontinuitätsflächen zweier homogener, vertikal geschichteter Medien unterschiedlicher Dichte. Wellen transportieren physikalische Eigenschaften wie Energie und Impuls und sind damit wichtig für das Verständnis der Stratosphäre. Für eine erweiterte Betrachtung der Wellenphänomene sei auf Pichler (1997) verwiesen.

### 5.2.3 Der polare Wirbel

Die solare Einstrahlung an den Polen ist starken jahreszeitlichen Schwankungen unterlegen. Dies hat eine grosse Auswirkung auf die stratosphärische Erwärmung aufgrund der Ozonabsorption der Sonnenstrahlung. Mit Einsetzen der arktischen Polarnacht im Herbst kühlt sich die Luft über Strahlungsprozesse im Infraroten über den Winterpolen stark ab. Die Abkühlungsrate beträgt in der Arktis etwa 0,2–0,3 K/Tag (Warnecke, 1997). Gleichzeitig hält die Einstrahlung in den Tropen an, so dass eine starke meridionale Baroklinität entsteht. Diese führt zu einer kräftigen zirkumpolaren Westströmung, dem sogenannten Polarnacht-Strahlstrom. Extratropische Luft wird in der Höhe in Richtung Pol nachgeführt (Konvergenz). Aus den sich abkühlenden und absinkenden Luftmassen entsteht in der Stratosphäre ein trichterförmiges Gebilde, in dem Luft in starke Rotation versetzt wird. Die Strahlungskühlung/-heizung und der Temperaturgradient zwischen Äquator und Pol sind somit die Generatoren für die Bildung und den Zerfall des polaren Stratosphärenwirbels. Der Aufbau der Vortexfläche ist bestimmt durch den Fluss von Luft durch isentrope Schichten aufgrund der diabatischen Zirkulation (Nash et al., 1996). Wenn die Polarregion am kältesten ist, reduziert sich das diabatische Absinken und der Vortex hört auf zu wachsen. Im Frühjahr wächst die Dissipation von Vortexluft, die Stabilität wird reduziert und der Vortex schrumpft.

Der polare Vortex ist ein Zyklon, in dem Windgeschwindigkeiten von 300 km/Std auftreten und der einen Durchmesser von etwa 4000 km hat. Die Winkelgeschwindigkeit von Luftmassen im Vortex beträgt etwa eine Erd-

umdrehung pro fünf Tage gegen den Uhrzeigersinn in der Arktis und im Uhrzeigersinn in der Antarktis. In Abbildung 5.6 ist die dreidimensionale Form des Vortex schematisch dargestellt. Die hellgraue Fläche kennzeichnet den Vortexrand. Man erkennt die Kegelform in der unteren Stratosphäre sowie die zerfaserte Grenze bei etwa 350–400 K.

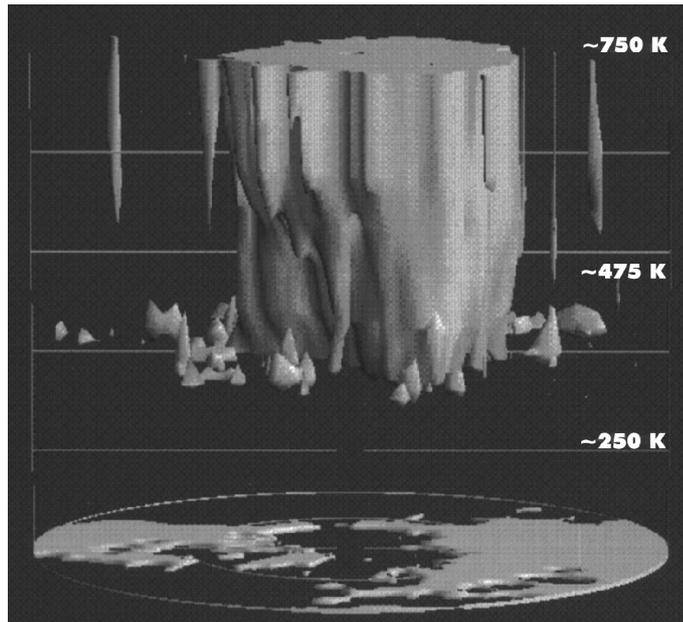


Abbildung 5.6: Schematische Darstellung der Form des polaren Wirbels über der Arktis vom 27. Januar 1993. Bild entnommen aus Zellner et al. (1999) und verändert. Die Darstellung ist in etwa 750 K Höhe abgeschnitten.

Über dem antarktischen Kontinent entsteht ein besonders stabiler, langanhaltender Polarwirbel. Der antarktische Vortex ist im Allgemeinen symmetrisch um den Pol gelegen und hält die Luft in der Region der polaren Nacht, wo ein starkes diabatisches Absinken stattfindet. Der arktische Wirbel ist im Gegensatz dazu viel kleiner, wird öfter durch aus der Troposphäre aufsteigende Wellen gestört und ist allgemein asymmetrischer beziehungsweise horizontal variabler als sein antarktisches Pendant (Zurek et al., 1996). Die stärkere Wellenaktivität der Nordhemisphäre bewirkt eine verstärkte Brewer-Dobson-Zirkulation, einen schwächeren Vortex, höhere Temperaturen und ein früheres Aufbrechen des Vortex. Ohne Wellenbrechung und

Brewer-Dobson-Zirkulation wäre die Polarregion im Strahlungsgleichgewicht und damit deutlich kühler.

Die im vorigen Kapitel beschriebenen Schwerewellen verursachen ein weiteres Phänomen der Stratosphäre, wobei die Temperaturen im Bereich der Mesopause über dem Vortex stark erhöht werden. Durch eine verstärkte vertikale Transmission von Schwerewellen und deren turbulentes Brechen über dem Vortex wird Luft adiabatisch abgesenkt, in den Vortexkern gedrückt, und dadurch in Höhen von etwa 30 bis 50 km stark erwärmt. Dieser Prozess wird im Englischen mit *downward control* bezeichnet, weil die Wellenbrechung in der Mesosphäre die Temperaturen im stratosphärischen Vortexkern bestimmt. Das bedeutet, dass der Vortex in der unteren Stratosphäre zwar deutlich kälter ist als die Luft außerhalb des Vortex, in größeren Höhen oberhalb von 35 km die Vortexluft jedoch deutlich wärmer ist (Duck et al., 1998).

Die Position des nordpolaren Vortex ist auch durch stratosphärische Variationen in der Druckverteilung bestimmt. Ein über den Aläuten gelegenes Stratosphärenhoch (Aläutenhoch<sup>9</sup>) bewirkt eine leichte Asymmetrie des Vortex. Er ist deshalb häufig in Richtung Nordskandinavien verschoben. Luftmassen im arktischen Vortex sind aus diesem Grund häufiger dem Sonnenlicht ausgesetzt und allgemein wärmer als im antarktischen Wirbel (Voemel et al., 1997). Mit dem Aufgang der Sonne über dem Pol löst sich der zyclonale Polarwirbel langsam auf und im Sommer entsteht dann ein polzenriertes Hochdruckgebiet, in dem schwache östliche Winde vorherrschen.

Unterschiede in Größe und zeitlicher Ausdehnung zwischen antarktischem und arktischem Vortex sind in Abbildung 5.7 dargestellt. Der antarktische Vortex ist auf horizontalen Flächen um mehr als 50 % größer. Er beginnt sich früher zu entwickeln und bleibt länger bestehen. Die auftretenden Temperaturen sind durchweg niedriger und die Temperaturfläche unterhalb 195 K ist mehr als doppelt so groß als im Norden<sup>10</sup>. Im Süden reichen die Temperaturen zur Entstehung von PSCs etwa 5 Monate lang aus.

Der Austausch von Luftmassen von Polarwirbel mit der umgebenden Luft

---

9 Nicht zu verwechseln mit dem Aläutentief, einem Bildungsgebiet von troposphärischen Tiefdrucksystemen über dem Nordpazifik.

10 Die jährliche Variation der antarktischen Vortexgröße ist nicht so groß wie im Norden, die Wahl des Jahres ist deshalb von untergeordneter Bedeutung. Im Norden war der Winter 1995/1996 vergleichsweise kalt mit einem großem Vortex.

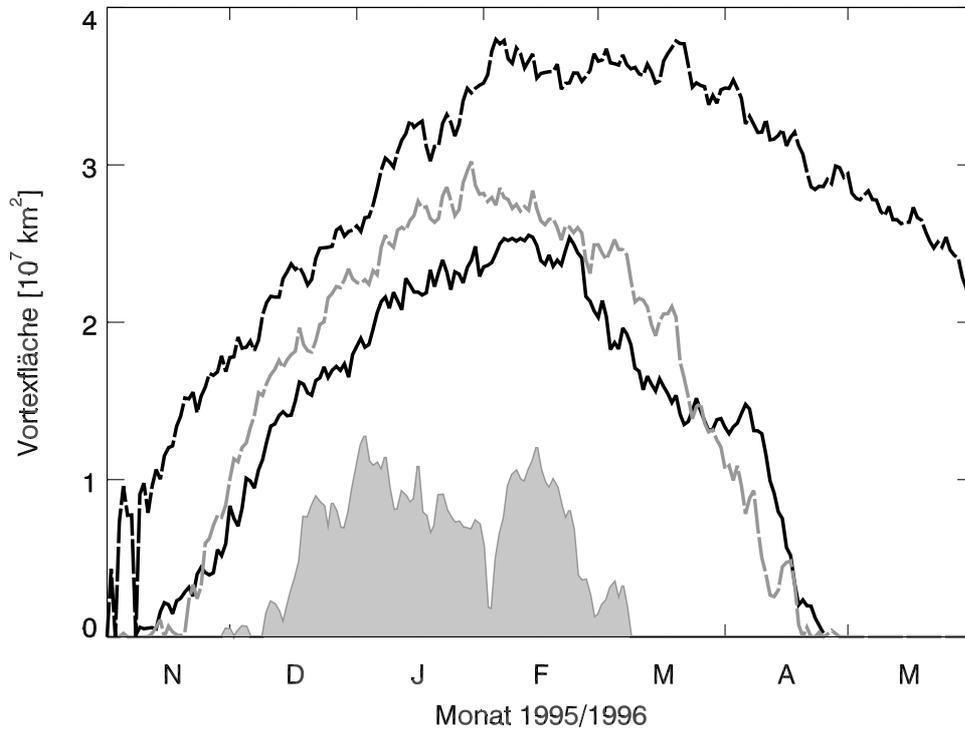


Abbildung 5.7: Vergleich [ $10^{-7} \text{ km}^2$ ] der nord- und südpolaren Vortexfläche (475 K) als Funktion der Zeit (aus UKMO-Daten). Die schwarze durchgezogene Linie zeigt die arktische Vortexfläche von 1995/1996, und die strich-punktierte Linie die antarktische Fläche aus dem Jahr 1999. Die graue Fläche zeigt die arktische Temperaturfläche unterhalb 195 K, bei der PSCs (Polare Stratosphärenwolken) entstehen können, im Vergleich zur Antarktischen (graue strich-punktierte Linie). Die antarktischen Werte sind um ein halbes Jahr verschoben worden.

ist allgemein stark eingeschränkt (Rummukainen et al., 1994). Untersuchungen von Austauschprozessen (Chen, 1994; Manney et al., 1994) zeigen, dass der Vortex ab einer Höhe von etwa 400 K in horizontaler Richtung relativ undurchlässig ist. Im Vortex haben Luftpakete infolge der starken Rotation eine hohe potentielle Vorticity (*Main Vortex*). Außerhalb des Vortex existiert eine breite Zone niedriger PV Gradienten (*Surf Zone*), daran schließen sich die Tropen an, wo eine Vorzeichenumkehr in der PV stattfindet. Im Übergangsbereich gibt es steile Gradienten der PV (*Vortex Boundary, Vortex Edge*), wo eine turbulente Durchmischung der Luft stark herabgesetzt ist. Der Vortexrand verhält sich dabei wellenförmig und eine chemische Isolierung des inneren Vortex ist gewährleistet. Infolge von Brechung planeta-

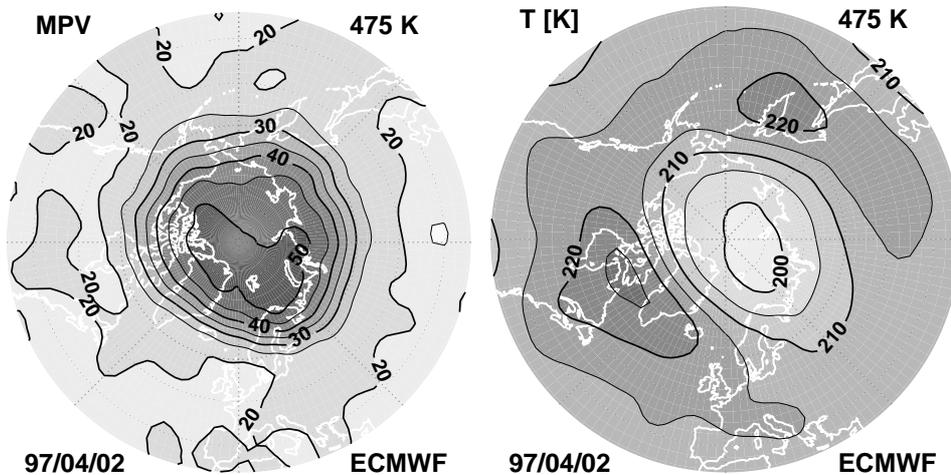


Abbildung 5.8: Potentielle Vorticity [PVU] (links) und Temperatur [K] (rechts) in der unteren Stratosphäre im Bereich des Ozonkonzentrationsmaximum (475 K) für den 2. April 1997 (ECMWF-Daten). Die Darstellung ist stereographisch und reicht von 35°N bis zum Pol, der Greenwich Meridian zeigt nach unten. Die Konturen sind in Weiß unterlegt. Die Konturlinien haben bei der PV einen Abstand von 5 PVU und bei der Temperatur von 5 K. Dunklere Flächen bedeuten höhere Werte.

rer Wellen am Vortexrand kann es zur irreversiblen Abspaltung von Luft aus dem Vortex kommen (McIntyre und Palmer, 1983). Durch solche Ereignisse wird Vortexluft in mittlere Breiten transportiert und eingemischt, wobei PV- und Material-Konturen irreversibel deformiert werden, daher der Name *Surf Zone* (McIntyre und Palmer, 1984; Norton, 1994). Dies sorgt für eine Schärfung der isentropen PV-Gradienten, wenn Konturen niedriger PV abgestreift werden. Es kann natürlich auch zum Transport von Material in den Vortex kommen, beispielsweise wenn eine persistenten troposphärischen Blockierung vorliegt (Plumb et al., 1994).

Zur Berechnung der Vortexfläche muss der Rand des Vortex genau bestimmt werden. Hierfür kann man den Vortexrand definieren als die Umrandung eines Gebietes mit dem maximalen Gradienten in der PV (Nash et al., 1996). Um Mehrdeutigkeiten bei der Auswertung zu vermeiden, kann das Maximum im Windgeschwindigkeitsfeld als zusätzliche Bedingung hinzugenommen werden. So kann der Vortexrand und die zugehörige Grenzregion bestimmt werden.

Es zeigt sich, dass das Windmaximum - der Polarnachtstrahlstrom - mit dem Bereich des Vortexrandes korrelieren. Untersuchungen der nordpolaren

Vortexkante von Rummukainen et al. (1994) für die Jahre 1992 und 1993 zeigen auf der 475 K Isentropen potentielle Vorticities von  $31 \pm 2$  PVU sowie  $34 \pm 2$  PVU. Weber et al. (2001) findet für Februar und März 1996 eine Vortexkante von etwa 38 PVU. Unter Kenntnis der Vortexdaten der letzten Jahre 1995 bis 2000 reicht im Allgemeinen ein fester, sehr konservativer Wert von 42 PVU aus, um das Vortexinnere hinreichend genau zu charakterisieren. Der hohe Wert wird auch gewählt, weil die GOME-Pixel sehr groß sind und man hiermit Randeffekte minimieren kann.

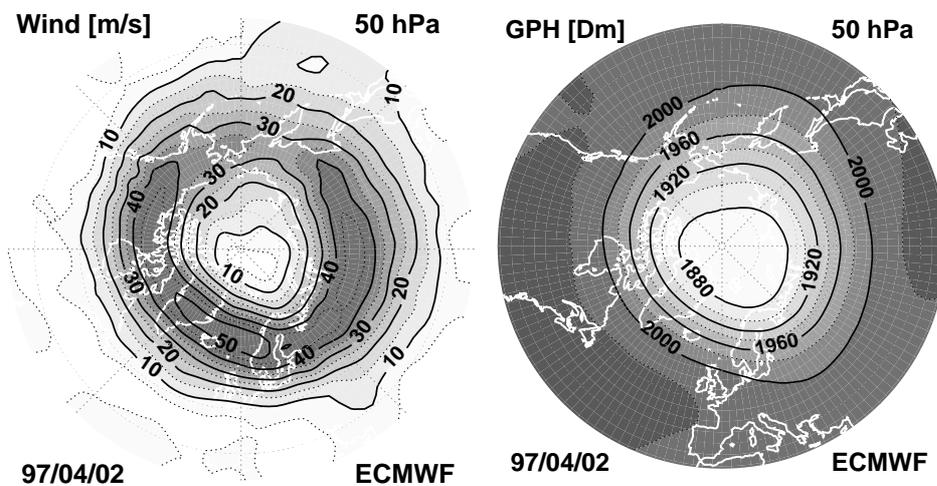


Abbildung 5.9: Horizontale Windgeschwindigkeit [ $\text{m s}^{-1}$ ] (links) und geopotentielle Höhe [ $\text{Dm} = 1/100\text{km}$ ] (rechts) vom 2. April 1997 in der Druckschicht von 50 hPa (etwa 20 km). Darstellung sonst wie in Abbildung 5.8. Die Konturintervalle sind für die Windgeschwindigkeit  $5 \text{ m s}^{-1}$  und für die geopotentielle Höhe 20 Dm.

In Abbildung 5.8 und 5.9 sind nordhemisphärische Karten geophysikalischer Parameter der unteren Stratosphäre (475 K) für den Fall eines starken, stabilen Polarwirbels vom 2. April 1997 dargestellt. Man erkennt starke Gradienten der modifizierten potentiellen Vorticity<sup>11</sup> (Abbildung 5.8 links), die den Vortexrand markieren. Das Temperaturminimum (Abbildung 5.8 rechts) mit Werten unter 200 K liegt zentriert in der Nähe des Pols. Die Temperaturmaxima liegen über dem nordamerikanischen Kontinent bei Grönland sowie in der Nähe von Japan. Die absolute Windgeschwindigkeit, gebildet aus dem zonalen und meridionalen Wind (Abbildung 5.9 links), zeigt die

<sup>11</sup> Die MPV entspricht in ihrer absoluten Größe bei 475 K gerade der normalen PV.

Windmaxima am Vortexrand und geringe Windgeschwindigkeiten sowohl im Vortexinneren als auch außerhalb des Vortex. Das Minimum der geopotentiellen Höhe [ $Dm = 10\text{ m}$ ] am Pol zeigt das großflächige Tiefdrucksystem in der polaren Stratosphäre an. Die Isobare 50 hPa entspricht etwa der 475 K Isentrope<sup>12</sup>. Der Polarwirbel ist mit potentiellen Vorticities über 50 PVU am 2. April 1997 über dem Nordpol zentriert. Wellenbewegungen durch Luftmassen aus den Extratropen sind an diesem Tag relativ schwach ausgeprägt, erkennbar an der Form der Isolinien unter etwa 20 PVU.

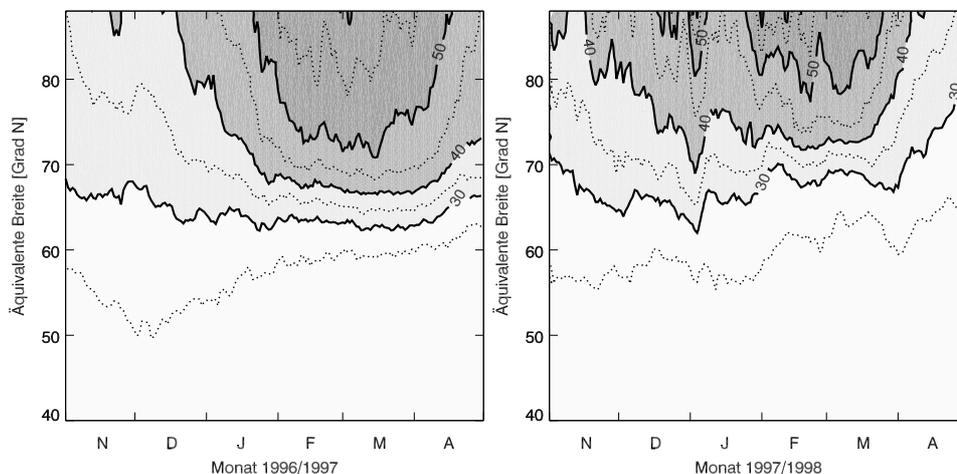


Abbildung 5.10: Die potentielle Vorticity als Funktion von Zeit und äquivalenter Breite für einen stratosphärisch kalten Winter 1996/1997 (links) und warmen Winter 1997/1998 (rechts) in der Nordhemisphäre. Der Abstand der PV-Isolinien ist 5 PVU. Gebiete hoher PV sind dunkler. Die Abszisse geht von Anfang November bis Ende April, die Ordinate von  $40^\circ\text{N}$  bis  $88^\circ\text{N}$ .

Statt den polaren Vortex nach der potentiellen Vorticity zweidimensional einzuteilen, lässt sich eine Umformung der potentiellen Vorticity nach der

<sup>12</sup> Wendet man Gleichung 5.10 auf dieses Beispiel an, so erhält man als Äquivalent für 50 hPa für das Vortexinnere ( $T = 200\text{ K}$ ) eine potentielle Temperatur von 472 K und für die Umgebung ( $T = 225\text{ K}$ ) 531 K. Die Äquivalenz gilt also im Allgemeinen nur für die kalten Gebiete im Vortex.

eindimensionalen äquivalenten Breite  $\phi_e$  [°] durchführen. Die äquivalente Breite ist dabei definiert als (Sobel et al., 1997):

$$\phi_e = \sin^{-1} \left( 1 - \frac{A(PV)}{2\pi r_e^2} \right), \quad (5.19)$$

wobei  $r_e$  der Erdradius ist und  $A(PV)$  die Fläche, die von der Kontur einer Isolinie (siehe Abbildung 5.8) konstanter  $PV$  umschlossen ist. Es können auch mehrere Teilflächen einer potentiellen Vorticity existieren, über die dann summiert wird. Ist die eingeschlossene Fläche bei sehr hohen  $PV$  gleich Null, so ist  $\phi_e = 90^\circ$ , hat die Fläche gerade die Größe der Erdhalbkugel für sehr kleine oder negative  $PV$ , so ist  $\phi_e = 0^\circ$ . Man erhält damit eine normierte, eindimensionale Darstellung von atmosphärenphysikalischen Größen als Funktion des äquivalenten Breitengrades  $\phi_e$  unabhängig von der jährlich variierenden Höhe der  $PV$ . So kann der Vortexrand bestimmt werden, dass die Isolinien der  $PV$  als Funktion von Zeit und äquivalenter Breite dargestellt werden. In Abbildung 5.10 sind zwei Zeitserien der potentiellen Vorticity für die Winter/Frühlingsperioden 1996/1997 und 1997/1998 gezeigt. Der Vortexrand wird definiert als der Bereich starker Gradienten etwa zwischen 30 und 40 PVU. Der polare Vortex entwickelte sich 1996 erst Mitte Dezember, war Anfang 1997 relativ groß und brach erst im Mai zusammen. Die Vortexfläche in 1998 war dagegen kleiner, der Vortex entwickelte sich schon im November 1997 und brach bereits Ende März 1998 schon wieder zusammen. Das spiegelt die interannuale Variabilität der Nordhemisphäre im Vergleich zum südhemisphärischen Winter wieder.

## 6 Das Trajektorienmodell TANGO

Um Aussagen über Herkunft und Verlauf von Luftmassenbewegungen machen zu können, stehen die assimilierten Windfelder der Wettervorhersagezentren ECMWF und UKMO zur Verfügung. Mit Hilfe eines geeigneten Modells lassen sich die Windfelder zur Bestimmung von Luftmassentrajektorien verwenden. TANGO ist ein solches Trajektorienmodell, welches im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde (Trentmann et al., 1998). Es basiert auf einem MATHLAB Programm von Sinnhuber (1999) (IUP Bremen) und wurde nach FORTRAN portiert. TANGO wurde bezüglich Anwendungsmöglichkeiten und Rechengeschwindigkeit für diese Arbeit weiterentwickelt.

Mit Hilfe der frei verfügbaren Datensätze von UKMO und ECMWF werden die stratosphärischen Windgeschwindigkeiten in zonaler und meridionaler Richtung verwendet, um Luftmassenbewegungen auf Isentropenflächen verfolgen zu können. Trajektorien beschreiben den räumlichen Weg eines Luftpakets über die Zeit, sie sind für die Analyse der atmosphärischen Dynamik von hoher Bedeutung. So lässt sich beispielsweise die Entstehung des Ozonminilochs (siehe Kapitel 9.3) auf den nordostwärtigen Transport subtropischer Luft und eine damit verbundene lokale Erhöhung der Tropopause zurückführen. Die Wege von Luftmassen auf der 475 K Isentrope am Beispiel einer Rückwärtstrajektorie gestartet über Ny-Ålesund ( $79,9^\circ\text{N}$ ,  $11,9^\circ\text{O}$ ), jeweils mit Winddaten aus ECMWF- und UKMO-Analysen berechnet, sind in Abbildung 6.1 dargestellt. Die Ergebnisse stimmen im Rahmen der unterschiedlichen Datensätze gut mit Berechnungen von Sinnhuber (1999) überein, wo jedoch ECMWF-Windfelder in höherer Auflösung (T106:  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  und T213:  $0,5^\circ \times 0,5^\circ$ ) verwendet wurden.

ECMWF 97/03/12 (79.9N, 11.9E) 475.0K

UKMO 97/03/12 (79.9N, 11.9E) 475.0K

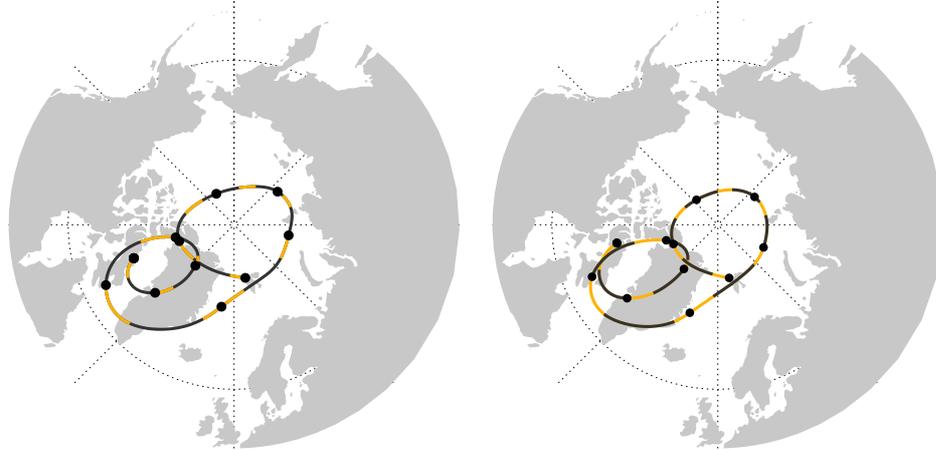


Abbildung 6.1: Isentrope Rückwärtstrajektorien von Luftmassen ermittelt aus ECMWF (links) und UKMO-Windfeldern (rechts). Der Endpunkt der Trajektorien liegt am 12. März 1997 auf 475 K über Ny-Ålesund. Der Weg der Luftmasse wurde jeweils 10 Tage verfolgt, die einzelnen Tage (jeweils 12 UTC) sind durch die gefüllten Kreise dargestellt. Die hellen Teilstücke sind Wege im Tageslicht, die dunklen liegen in der Nacht. Zum Vergleich der Trajektorien mit anderen Berechnungen sei auf Sinnhuber (1999) (Seite 94) verwiesen.

## 6.1 Physikalische Grundlagen

Die Bewegung von Luftpaketen in der Atmosphäre kann durch die einfachen Differentialgleichung für den Geschwindigkeitsvektor  $\mathbf{u}$  [ $\text{m s}^{-1}$ ]

$$\frac{d\mathbf{x}}{dt} = \mathbf{u}(\mathbf{x}, t), \quad (6.1)$$

beschrieben werden. Hierbei gibt  $\mathbf{x}$  die Position einer Luftmasse und  $\mathbf{u}(\mathbf{x}, t)$  den dazugehörigen Windvektor zur Zeit  $t$  an. Da die Bewegung auf isentropen Flächen stattfindet, ist die vertikale Komponente der Windgeschwindigkeit vernachlässigbar klein. Auf Zeitskalen einiger Tage können diabatische Prozesse, die für eine Änderung des Höhenniveaus im isentropen Höhengitter sorgen, vernachlässigt werden. Hierbei wird zwar ein Fehler gemacht, jedoch sind auch die vertikalen Windgeschwindigkeiten nur unzureichend bekannt.

Die Diskretisierung der Zeitachse ist für solche Berechnungen frei wählbar. Es zeigt sich, dass eine Diskretisierung von einer Stunde vollkom-

men ausreicht, wenn tägliche Datensätze für das Windfeld verwendet werden. Die Windfelder und die Felder der anderen meteorologischen Größen Temperatur, geopotentielle Höhe und potentielle Vorticity liegen pro Tag auf Isobaren vor. Die horizontalen Auflösungen der einzelnen Datenfelder (UKMO, ECMWF) sind in Abschnitt B beschrieben. Diese Felder werden in einem ersten Schritt auf die gewünschte Isentrope linear interpoliert.

Mit Hilfe des Runge-Kutta Schemas vierter Ordnung (Press et al., 1992) wird ein Luftpaket dann in der Zeit advektiert und die Länge und Breite protokolliert. Als Koordinatensystem kann dabei entweder ein zweidimensionales Längen-Breiten- oder ein kartesisches Gitter verwendet werden. Die Einheit der Windgeschwindigkeit ist dann entweder  $[\text{rad s}^{-1}]$  oder  $[\text{m s}^{-1}]$ . Das kartesische Gitter ist vorteilhaft bei Trajektorien in Polnähe, da am Pol im Längen/Breiten-Gitter eine Singularität vorliegt, umgekehrt hat das kartesische System am Äquator eine Unendlichkeitsstelle. Im FORTRAN-Code von TANGO werden gleichzeitig die Orte sowohl im Länge-Breite Koordinatensystem als auch im kartesischen Koordinatensystem berechnet, so dass zwischen den Koordinatensystemen je nach Lage der Luftmasse gewechselt werden kann. Gleichzeitig werden für jede zeitliche Stützstelle die geophysikalischen Parameter wie Sonnenzenitwinkel, Temperatur und potentielle Vorticity mitberechnet.

Zur Beschleunigung der notwendigen räumlichen bilinearen Interpolation ist ein einfaches Verfahren entwickelt worden, mit dem die Suche in den 4-dimensionalen Feldern der Winddaten, gebildet aus Tag, isentroper Höhe, sowie Länge und Breite, erleichtert wird. Hierdurch konnte der Algorithmus erheblich beschleunigt werden, so dass eine Berechnung ganzer Felder von Trajektorien sehr schnell möglich ist (siehe Abbildung 6.2).

Mit TANGO können sowohl Vorwärts- als auch Rückwärtstrajektorien auf den beiden Halbkugeln (Nord, Süd) berechnet werden. Vorwärtstrajektorien bedeuten, dass der Weg eines Luftpakets in der Zeit vorwärts bestimmt wird, Rückwärtstrajektorien zeigen dagegen den Ursprung einer Luftmasse an. Dies ist sinnvoll für die Untersuchung von Phänomenen wie den oben erwähnten Ozonminiloch und für das im nächsten Abschnitt beschriebene Verfahren des Reverse-Domain-Filling.

Die räumlichen Abweichungen in den Trajektorien im Vergleich zu realen Luftmassenbewegungen sind von Knudsen und Carver (1994) abgeschätzt worden. Eine Schwäche der Trajektorienberechnungen ist die grobe Auflö-

sung der Datensätze in räumlicher und zeitlicher Richtung. Insbesondere die vertikale Auflösung trägt in Höhen über 475 K stark zu den Fehlern in der Berechnung bei. Die Wahl der Zeitschritte wie auch die horizontale Auflösung sind hingegen relativ unkritisch. Diabatische Effekte machen nach etwa 10 Tagen Trajektorienberechnung etwa 3 % Fehler aus. Vergleiche mit Ballon-Trajektorien im Vortex zeigen bereits nach zwei Tagen Abweichungen von etwa 12 %, was auf die Differenz der realen und analysierten Winde zurückgeführt werden kann. Sobel et al. (1997) verwenden 15-Tagestrajektorien unter der Annahme von Strahlungskühlungsraten von nicht mehr als 1 K/Tag in der winterlichen polaren Stratosphäre. Dies entspricht einer maximalen Änderung der Isentrope von 15 K. In dem Höhenbereich von unter einem Kilometer ändern sich die horizontalen Winde aber nur minimal.

Trajektorienberechnungen, wie mit TANGO durchgeführt, weichen im Allgemeinen von der Wirklichkeit ab. Sie sollten als Indikator für Luftmassenbewegungen aber nützliche Informationen liefern können. Jedoch können Luftmassen in der Nähe divergenter Windfelder sehr rasch vollkommen andere Wege nehmen als berechnet. Erst durch Mittelung über viele Trajektorien wie bei der RDF-Methode können solche Effekte herausgemittelt werden und so die Aussagekraft der Berechnung deutlich stärken. Andererseits werden Trajektorienberechnungen beispielsweise für die Vorhersage von Übereinstimmungen einer beprobten Luftmasse bei Sondenstarts (Match) mit gutem Erfolg verwendet (Rex et al., 1997, 1998).

## 6.2 Reverse Domain Filling

Zur Erstellung räumlich hochaufgelöster Felder geophysikalischer Parameter können Advektionsalgorithmen wie TANGO verwendet werden. Für Trajektorienmodelle wurden verschiedene Verfahren zur Ableitung kleinskaliger Phänomene aus den großskaligen Datensätzen in der Literatur vorgestellt (Dritschel, 1989). Neben der Kontouradvektion (Dritschel, 1989; Norton, 1994; Sobel et al., 1997) kann auch das *Reverse-Domain-Filling*-Verfahren verwendet werden, welches im Rahmen dieser Arbeit angewandt wurde (Sobel et al., 1997).

Die Methode der Kontouradvektion (CA: *Contour Advection*) erlaubt die

Advektion eines passiven Tracers auf Isentropen unter Erhaltung kleinskaliger Strukturen. Sie geht von einem irregulären Initialfeld aus, bei dem die Konturen konstanter Größe eines Tracers bekannt sind. Diese Konturen werden dann in der Zeit verfolgt. Da sich die Konturlinien mit der Zeit aufweiten und falten können und so ihre Länge vergrößern, muss die Zahl der die Kontur repräsentierenden Punkte laufend erhöht werden. Die Anzahl der Punkte entlang einer Isolinie wächst dabei exponentiell an (Bithell und Gray, 1997). Das macht das Verfahren umständlich zu programmieren.

Das *Reverse-Domain-Filling*-Verfahren (RDF) geht dagegen von einem regulären Gitter zur Stopzeit  $t_e$  aus, welches im Allgemeinen weit höher aufgelöst als das analysierte Tracerfeld ist. Für jeden Gitterpunkt wird dann eine Rückwärtstrajektorie von der Stopzeit zur Startzeit  $t_a$  berechnet. Die Anfangspunkte der Rückwärtstrajektorien zur Zeit  $t_a$  sind im Allgemeinen irregulär verteilt. An den Orten dieser Anfangspunkte wird das Tracerfeld abgelesen, das heißt durch räumliche Interpolation errechnet und in der Zeit nach vorne auf das reguläre Gitter der Endpunkte advektiert. Da der Tracer als eine in der Zeit konservative Größe angenommen wird, erhält man eine neue hochaufgelöste Verteilung des Tracerfeldes, die jedoch abweichen kann von der niedrigaufgelösten Verteilung des aktuellen Tracerfeldes bei  $t_e$ .

Der Unterschied beider Verfahren ist, dass in der CA das zweidimensionale Feld durch einen Satz eindimensionaler Kurven repräsentiert wird, während das RDF-Verfahren die Zweidimensionalität durch die Wahl eines Standardgitters erhält. Bei genügend hoher Auflösung sollten beide Verfahren gleiche Ergebnisse liefern (Schoeberl und Newman, 1995).

Beide Verfahren erlauben es, aus den grob aufgelösten Feldern der horizontalen Winde und den Tracerverteilungen kleinskalige Merkmale der Atmosphäre herauszuarbeiten (Waugh und Plumb, 1994). Durch die Advektion von grob aufgelösten Feldern erzeugt man feinskalige Strukturen in den Tracerfeldern, die in den analysierten Tracerfeldern nicht auftreten.

Eingabeparameter für diese Techniken sind ein Initialfeld des Tracers, zum Beispiel die potentielle Vorticity oder Ozon, und eine zeitliche Sequenz von Windfeldern, welche die zu untersuchende Periode abdeckt. Im Programm TANGO kann ein beliebiges hochaufgelöstes Gitter verwendet werden. Für die RDF-Rechnungen wurde ein Zeitraum von 10 Tage für die Rückwärtstrajektorien und ein  $1^\circ \times 1^\circ$  Gitter von  $35^\circ$  bis  $88^\circ$  Breite und  $-180^\circ$  bis  $180^\circ$  Länge verwendet. Das entspricht 19080 Trajektorienbe-

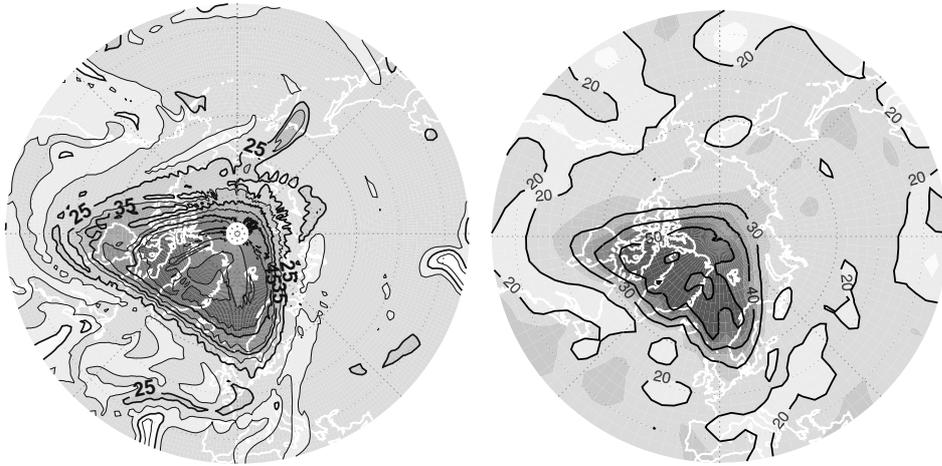


Abbildung 6.2: Vergleich von *PV*-Feldern ermittelt jeweils mit TANGO RDF-Rechnungen (links) und einem analysierten MPV-Feld (rechts) in der unteren Stratosphäre (475 K) aus UKMO-Daten vom 11. März 1998. In beiden Karten wurden die gleiche Schwarz-Weiß-Kodierung verwendet. Der Abstand der Isolinien beträgt 5 PVU.

rechnungen pro Tag, die innerhalb von 10 Minuten Rechenzeit auf einem SUN-SPARC Rechner durchgeführt werden können. So können schnell RDF-Rechnungen für jeden Tag im polaren Winter in der Stratosphäre durchgeführt werden. Ein Beispiel für die RDF-Berechnungen ist in Abbildung 6.2 dargestellt. Den analysierten UKMO-Daten vom 11. März 1998 (rechts) werden RDF-Rechnungen mit UKMO-PV-Feldern (links) vom 1. März 1998 als Anfangswerte der Rückwärtstrajektorien gegenübergestellt. Deutlich zu sehen sind die hochauflösten Strukturen sowie die Bildung von Filamenten im Vortexrandbereich in der RDF-Karte, die für eine Berechnung des Luftmassenaustauschs über den Vortexrand wichtig ist. Weitere Ergebnisse der RDF-Rechnungen zur Abgeschlossenheit des Vortex im nordhemisphärischen Winter ist im Kapitel 10 zu finden.

## 7 FUDD: Ozonmittelwerte und Absinkraten

Das Programmpaket FUDD (*FURM Ozone and Diabatic Descent*) ist primär entwickelt worden, um den chemischen Ozonverlust im polaren Vortex zu berechnen. Mit FUDD können aus den Temperatur- und Vorticity-Feldern des UKMO und GOME-Ozonprofilen Mittelwerte des Ozonmischungsverhältnisses und der diabatischen vertikalen Bewegung, sowie deren Standardabweichungen für frei wählbare Grenzen der potentiellen Vorticity gewonnen werden. Dafür wird die Atmosphäre nach der Größe der *PV* eingeteilt. Die diabatisch bedingte Änderung der Luftmassenhöhe relativ zur isentroper Schichtung, also das Auf- und Absinken von Luftmassen infolge von Strahlungskühlung beziehungsweise -heizung wird mit Hilfe des Schmalband-Strahlungstransportmodell MIDRAD berechnet (siehe Abschnitt 7.1). Dies ist nötig, um Rückschlüsse aus den GOME-Messungen auf den wichtigen chemischen Ozonverlust treffen zu können, indem man dynamische Effekte abtrennt.

Allgemein können Ozonänderungen in der polaren Stratosphäre unter Vernachlässigung horizontaler Mischungsprozesse beschrieben werden als:

$$\left. \frac{dO_3}{dt} \right|_{\theta} = \frac{\partial O_3^c}{\partial t} + \frac{\partial O_3^d}{\partial t} \quad (7.1)$$

Hierbei entspricht die linke Hälfte der Gleichung der gemessenen Ozonänderung in einer Höhe  $\theta$ . Diese ist gleich der Summe der chemisch und dynamisch bedingten Ozonänderungen.

In den folgenden Abschnitten sollen die einzelnen Parameter für FUDD und das Heizratenprogramm MIDRAD dargestellt werden. FURM-Ozonprofile (siehe Abschnitt 7.2) sind die Grundlage der hier vorgestellten Analysen. Zur Berechnung von Heizraten werden darüber hinaus die Profile von Temperatur, Kohlendioxid und Wasserdampf benötigt (7.2). In Abschnitt 7.3

werden dann die gewählten Approximationen betrachtet und Fehlerquellen diskutiert.

## 7.1 Diabatische Prozesse

Wenn keine chemischen Reaktionen eine Produktion oder Zerstörung von Ozon bedingen, lässt sich das Ozonmischungsverhältnis auf isentropen Flächen als konservative Größe annehmen. Das Ozonmischungsverhältnis in der unteren Stratosphäre ist, wie bereits gezeigt, monoton mit der Höhe steigend. Ein diabatisches Absinken von Luft aus höheren Schichten über Isentropen hinweg führt deshalb zu einer Erhöhung des Volumenmischungsverhältnisses in Schichten unterhalb des Maximums. Betrachtet man den Gesamtgehalt an Ozon in einer Schicht, bedeuten höhere VMR in der unteren Stratosphäre auch höhere Teilchenzahldichten. Großflächige Absinkvorgänge im Vortex müssen deshalb bei der Bestimmung der chemischen Ozonänderungen berücksichtigt werden.

Allgemein wird die Änderung von Ozon an einem Ort auf Isentropen entweder durch horizontalen/vertikalen Transport oder durch chemische Vorgänge bestimmt. Normalerweise ist der Austausch von Luftmassen über die Vortexgrenze sehr gering und braucht deshalb nicht in Betracht gezogen werden. Dieser Fall liegt, wie die Untersuchungen in dieser Arbeit zeigen, hauptsächlich in den kalten Wintern vor, in denen ein zentrierter Vortex vorliegt, der durch Wellenaktivitäten wenig gestört wird. Das gilt allgemeiner für jedes Jahr auf der Südhalbkugel und für Winter mit geringer dynamischer Aktivität auf der Nordhalbkugel. Der vertikale Transport von Luftmassen ist jedoch in keinem Fall vernachlässigbar und direkt proportional zu den diabatischen Heizraten. Die Zeit des stärksten Absinkens von Luftmassen im Vortex liegt am Anfang der polaren Nacht. Dem gegenüber werden die größten Ozonverluste erst mit erneutem Sonnenaufgang gemessen, wenn ein geringeres Absinken gefunden wird. Die Auswertung von Ozonprofilen ist bei GOME auf diese Zeit etwa ab Februar beschränkt.

Manney et al. (1994) haben gezeigt, dass es polwärts von  $30^\circ$  ein generelles Absinken und eine Bewegung von Luftmassen in Richtung des Pols gibt. In warmen Wintern mit größerer dynamischer Aktivität ist das diabatische Absinken stärker, weil durch die höheren Temperaturen ein Zustand

vorliegt, der weiter vom Strahlungsgleichgewicht entfernt ist. Sie berechnen zu Beginn des Winters ein Absinken von etwa  $-0,8\text{ K/Tag}$  in der unteren Stratosphäre, und zum Ende des Winters von etwa  $-0,5\text{ K/Tag}$ . Flugzeugmessungen zeigen Werte von etwa  $-0,7\text{ K/Tag}$  zur Mitte des Winters. Die Stärke des Absinkens steigt mit zunehmender Höhe an. Für 500 K berechnen Sparling et al. (1997) nördlich von  $50^\circ\text{N}$  beispielsweise etwa  $-1 \pm 0,8\text{ K/Tag}$  für die zonal gemittelte Heizrate am 1. Februar 1993 unter Verwendung von UKMO- und NCEP-Daten.

Man muss jedoch bedenken, dass die berechneten Heizraten stark vom Modell und dessen Genauigkeit bezüglich der Eingabeparameter, insbesondere von den Ozon- und Temperaturprofilen, abhängig sind (Manney et al., 1994). Dies gilt vor allem für Gebiete außerhalb der Polarnacht, wo die Nettorate eine Summe der entgegengesetzten Anteile von kurzweiliger Heizung und der langweiliger Kühlung sind. Sind die Nettoheizraten klein, ist also der absolute Wert sehr unsicher. Weiterhin ist es schwierig, den Effekt von Wolken in das Modell einzubauen. Untersuchungen von Rosenfield et al. (1994) zeigen, dass der Einfluss von Wolken in der Stratosphäre in NH-Polarregionen zu einer Erhöhung der stratosphärischen Kühlung um etwa 10–20% beiträgt. Die Berechnung von Heizraten ohne Wolken führt deshalb generell zu einer Unterschätzung des mittleren Absinkens der Luft.

Man kann die zeitliche Änderung des Volumenmischungsverhältnis von Ozon infolge der Strahlungskühlung beziehungsweise -heizung schreiben als:

$$\left. \frac{\partial O_3^d}{\partial t} \right|_{\theta} = \frac{\partial O_3}{\partial \theta} \frac{\partial \theta}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial t}. \quad (7.2)$$

Der diabatische Prozess wird durch die Änderung des Ozons mit der isentropen Höhe, die Abhängigkeit der potentiellen Temperatur von der Temperatur, sowie die Änderung der Temperatur mit der Zeit bestimmt. Diese Ableitungen müssen bestimmt werden, um den chemisch bedingten Ozonverlust bestimmen zu können.

Setzt man die Definitionsgleichung 5.10 für die potentielle Temperatur  $\theta$  ein, so erhält man nach Umformung die zeitliche Änderung des Ozonmi-

schungsverhältnis auf einer Isentropen, hier diabatische Ozonänderung  $\alpha_\theta$  [ppbv/Tag] genannt (Braathen et al., 1994; Sinnhuber et al., 1998):

$$\alpha_\theta = Q \left( \frac{p_0}{p} \right)^\kappa \frac{\partial O_3}{\partial \theta} \quad (7.3)$$

mit dem Bodendruck  $p_0$  [hPa] und dem Verhältnis der Gaskonstanten für trockene Luft zur spezifischen Wärme bei konstantem Druck  $\kappa = R/c_p$ . Die Heizrate  $Q$  [K/Tag] ist definiert als die Ableitung der Temperatur nach der Zeit  $Q = -\partial T/\partial t$ . Zur Berechnung der diabatischen Ozonänderung  $\alpha_\theta$  eines Luftpakets in einer isentropen Schicht  $\theta$  sind neben den aktuellen Ozonprofilen weitere meteorologische und physikalische Eingabeparameter, wie zum Beispiel Temperatur- und Druckprofile nötig.

Zur Berechnung der diabatischen Heizrate  $Q$  muss das Strahlungsfeld sowohl im sichtbaren als auch im infraroten Wellenlängenbereich bekannt sein. Die Heizrate  $Q$  bestimmt sich aus der Änderung des Strahlungsflusses  $F$  mit der Höhe  $z$ :

$$Q = \frac{1}{\rho c_p} \frac{dF}{dz} \quad (7.4)$$

mit der Luftdichte  $\rho$  [ $\text{cm}^{-3}$ ] und der spezifischen Wärmekapazität  $c_p$  [ $\text{J K}^{-1} \text{kg}^{-1}$ ] als Normierungsfaktoren.

Der Strahlungsfluss  $F$  ist von der Wellenlänge  $\lambda$  [nm] abhängig und als das Integral der Strahldichte  $I_\lambda$ , die aus allen Raumwinkeln auf eine Fläche auftrifft, definiert:

$$F_\lambda = 2\pi \int_1^0 I_\lambda \mu d\mu \quad (7.5)$$

wobei  $\mu = \cos \theta$  der Cosinus des Polarwinkels bezüglich der Flächennormalen ist. Der Netto-Fluss ist die Differenz der Flüsse in den beiden Richtungen senkrecht zur Fläche. Dieser muss mittels eines geeigneten Strahlungstransportmodells (STM) berechnet werden, welches sowohl die kurzwellige Absorption insbesondere von Ozon als auch Absorption und Emission im Langwelligen durch  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  berücksichtigt.

Die kurzwellige Absorption solarer Strahlung ist von der Höhe abhängig.

In der mittleren Atmosphäre ist Ozon der prominenteste Absorber. Ab etwa 35 km ist dann  $O_2$  verantwortlich für das Heizen der Stratosphäre vorwiegend. Einen geringeren Einfluss haben  $NO_2$  und  $H_2O$ . Insbesondere in der Troposphäre liegt jedoch Wasserdampf in großen Konzentrationen vor und ist somit auch im Kurzwelligen ein wichtiger Absorber. Da die Absorption solarer Strahlung einen Tages- und Jahresgang hat, müsste die integrierte Einstrahlung eines Tages berechnet werden. Dies kann aber auch durch eine geeignete Parametrisierung erfolgen (Cogley und Borucki, 1976), welche auf etwa 4% genau ist.

Im langwelligen Strahlungsbereich spielt neben der Absorption auch die Eigenemission der atmosphärischen Gase eine Rolle. Die Strahlungsleistung eines schwarzen Strahlers wird durch die Planck-Funktion beschrieben. Das Maximum der Abstrahlung für stratosphärische Zustände ( $\bar{T} \approx 250\text{K}$ ) liegt nach dem Wienschen Verschiebungsgesetz im Infraroten bei etwa  $11\ \mu\text{m}$ .

## 7.2 Eingabeparameter für die Berechnung von Heizraten

Mit Hilfe eines Schmalband-Strahlungstransportmodells namens MIDRAD von Shine (1987, 1991) werden die Strahlungsflüsse  $F$  der Atmosphäre und daraus die gesuchten Heizraten  $Q$  berechnet. Das Modell umfasst den Spektralbereich von 0 bis  $3000\text{cm}^{-1}$  bei einer spektralen Auflösung von  $10\text{cm}^{-1}$ . Es wurde gezeigt, dass im Langwelligen die berechneten Resultate gut mit Line-by-Line Modellen übereinstimmen (de F. Forster und Shine, 1997). Die kurzwelligen Anteile der Strahlungsflüsse werden mit dem Modell DISORT *Discrete Ordinate* (Stamnes und Conklin, 1984; Stamnes et al., 1988; de F. Forster und Shine, 1997) berechnet. DISORT ist auch als Vergleichsmodell für GOMETRAN benutzt worden und beide Modelle zeigten sehr gute Übereinstimmung für den kurzwelligen Bereich (Eichmann, 1996). Eine weiterführende Analyse der Heizratenberechnung kann bei Sinnhuber (1999) gefunden werden. Im folgenden sollen die Eingabeparameter für MIDRAD kurz vorgestellt werden.

Das Temperaturprofil wird aus UKMO-Daten abgeleitet. Die Druckflä-

chen des Datensatzes liegen auf 22 Schichten von 1000hPa bis 0,316hPa (circa 0 bis 55 km), die horizontale Auflösung beträgt  $2,5^\circ$  Breite und  $3,75^\circ$  Länge. Die FURM-Ozonprofile als Funktion des Drucks werden zur Berechnung der Heizraten im sichtbaren und ultravioletten Wellenlängenbereich verwendet. Als Bodenalbedo wird der Wert 0,9 für Polarregionen, die während des Winters im Allgemeinen eis- oder wolkenbedeckt sind, angenommen. Dies kann zur Überschätzung der troposphärischen Abstrahlung im Sichtbaren führen, wenn ausserhalb der Polarregionen in mittleren Breiten gemessen wird, wo Boden und Meeresoberfläche eine niedrigere Albedo hat. Zur Verbesserung müsste eine Abschätzung der Albedo für jeden Fußpunkt eines FURM-Profiles aus Datenbanken oder aus GOME-Daten gemacht werden. Das ist in der gegenwärtigen Version des Programms nicht möglich.

Wasserdampf kommt vorwiegend in der Troposphäre vor und ist auf täglicher, saisonaler und geographischer Basis stark variabel. Wasser wird in die Atmosphäre durch Verdunstung eingetragen, über Niederschläge kehrt das Wasser zum Boden zurück. Der hydrologische Zyklus ist mit den Mustern von atmosphärischer Zirkulation und Temperatur verknüpft. Die Verteilung troposphärischen Wasserdampfs variiert so in Abhängigkeit von meteorologischen Bedingungen sehr stark. Das Mischungsverhältnis beträgt im Mittel etwa 1 % am Boden und einige ppmv in der Stratosphäre. Luft wird durch die Hadley-Zelle vor allem in den Tropen über die Tropopause transportiert. Kondensation und Niederschlag stellen hier einen effektiven Mechanismus zur Dehydration dar, so dass die Stratosphäre sehr trocken ist.

Wasser fällt eine wichtige Rolle für die Chemie der Atmosphäre zu. Die Oxidation von Wasserdampf ist die wichtigste Quelle für das Hydroxyl-Radikal (OH). Wasser beeinflusst zudem das Ozonbudget über die katalytischen Zyklen des OH (Brasseur et al., 1999). Weiterhin ist Wasserdampf durch Emission im Infraroten ein Treibhausgas in Troposphäre und Stratosphäre.

Zur Bestimmung des Wasserdampfgehaltes in der Troposphäre wird die mittlere relative Feuchte  $\rho_{\text{rel}}$  [%] als bekannt vorausgesetzt. Aus UKMO-Datensätzen ist die Temperatur  $T$  [K] als Funktion von Ort und Höhe be-

kannt. Die absolute Feuchte  $\rho_{\text{abs}}$  [ $\text{g m}^{-3}$ ] lässt sich bestimmen als (Smith, 1993):

$$\rho_{\text{abs}} = 2170,0 \frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{T}, \quad (7.6)$$

mit dem Wasserdampfdruck  $p_{\text{H}_2\text{O}}$  [kPa]. Der Wasserdampfdruck wiederum ist mit der relativen Feuchte  $\rho_{\text{rel}}$  verknüpft durch

$$\rho_{\text{rel}} = \frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{p_{\text{s}}(T)} \times 100\%. \quad (7.7)$$

Dabei kann der Sättigungsdampfdruck  $p_{\text{s}}(T)$  [kPa] über die empirische Formel:

$$p_{\text{s}}(T) = 2,4096(300/T)^5 10^{(10-2950,2/T)} \quad (7.8)$$

mit einer Genauigkeit von etwa 0,1 % bestimmt werden. Aus diesen Gleichungen lässt sich dann die gesuchte absolute Feuchte berechnen.

Für die Stratosphäre steht die UARS-Klimatologie von Wasser (Randel et al., 1998) als Funktion von Jahreszeit und Breitengrad zur Verfügung. Der Übergang zwischen troposphärischem Wasserdampfgehalt und Klimatologie findet bei etwa 100 hPa (16km) statt. Die Kurven werden auf das vertikale Eingabegitter für MIDRAD interpoliert. Durch Glättung wird der Übergang zwischen den zwei Schichten angenähert.

Kohlendioxid ist gleichförmig in der Atmosphäre verteilt. Die Konzentration nimmt hauptsächlich durch stetige Verbrennung fossiler Brennstoffe und Abholzung von Wäldern jährlich zu und weist infolge der Jahreszeiten und der damit verbundenen biologischen Aktivität einen Jahresgang auf. Das Maximum liegt Anfang Frühjahr, das Minimum Anfang Herbst.  $\text{CO}_2$  ist neben Wasserdampf ebenfalls ein Treibhausgas. Diese Gase sind im kurzwelligen Bereich der Solarstrahlung relativ transparent und absorbieren im langwelligen Bereich die von der Erde emittierte Strahlung. Aufgrund von Treibhausgasen ist die globale Temperatur der Atmosphäre durchschnittlich  $30^\circ\text{C}$  größer als ohne sie (Warrick et al., 1990).

Das  $\text{CO}_2$ -Mischungsverhältnis  $c_{\text{CO}_2}$  [ppmv] lässt sich als Funktion des Jahres  $y$  abschätzen mit:

$$c_{\text{CO}_2} = 312,15 + 0,24(y - 1950) + 0,01943(y - 1950)^2. \quad (7.9)$$

Diese empirische Funktion wurde aus Messwerten des Mauna Loa Observatoriums auf Hawaii gewonnen (Smith, 1993). Das Volumenmischungsverhältnis beträgt somit in etwa 373 ppm (Parts per Million) für das Jahr 2000. Für das STM wird  $\text{CO}_2$  als höhenunabhängig angenommen.

Mit Hilfe von FURM (siehe Abschnitt 4.3) werden aus GOME-Messungen Ozonvertikalprofile abgeleitet. Im GOMETRAN-Vorwärtsmodell wird das atmosphärische Strahlungsfeld auf einem Höhengitter berechnet, dass für die Ozonprofilauswertung auf 71 Schichten von 0 bis 70km für Schichthöhen von 1km festgelegt wurde (siehe Abschnitt 3.1). Eingabeparameter für GOMETRAN sind die wellenlängen- und höhenabhängigen Absorptions- und Streuquerschnitte der atmosphärischen Gase. Hierfür wird die Ozonteilchenzahldichte  $\rho$  [ $\text{cm}^{-3}$ ] als Funktion der Höhe [km] verwendet. Deshalb wird dieses Format auch für die Ausgabe des FURM-Retrievalmodells verwendet.

Ozonkonzentrationen in Abhängigkeit von der Höhe sind für die Betrachtung von Bewegungen und chemischen Reaktionen, die entlang von Isentropen verlaufen, in der Stratosphäre nicht zweckmäßig. Stattdessen kann das Volumenmischungsverhältnis [ppmv] von Ozon als Funktion der potentiellen Temperatur  $\theta$  [K] verwendet werden, da das Mischungsverhältnis für Bewegungen von Luftpaketen auf Isentropen konstant bleibt. Die Umrechnung der Teilchenzahldichte  $\rho$  in das Volumenmischungsverhältnis  $c$  ist gegeben durch:

$$c = \rho \frac{kT}{p}. \quad (7.10)$$

Dabei ist  $k$  die Boltzmann-Konstante [ $\text{J K}^{-1}$ ],  $T$  [K] die Temperatur und  $p$  [hPa] der Druck. Aus der Umrechnung ist ersichtlich, dass die Ozonprofile bestimmt als  $\rho$  oder  $c$  das Maximum in verschiedenen Höhen haben, da  $\rho$  durch den exponentiell mit der Höhe abnehmenden Druck  $p$  geteilt wird. Das Volumenmischungsverhältnis ist bis in die mittlere Stratosphäre

bei etwa 35 km stetig zunehmend, während die Teilchenzahldichte ihr Maximum infolge der Druckabnahme in etwa 20 km Höhe hat (siehe auch Abbildung 4.3).

Zur Umrechnung von Ozonkonzentrationen in Volumenmischungsverhältnisse werden die UKMO-Analysen von Druck und Temperatur verwendet. Die UKMO-Daten sind die Grundlage zur Beschreibung der Atmosphäre im Strahlungstransport, sie dienen als Parameter zur Berechnung des Volumenmischungsverhältnis sowie der potentiellen Temperatur und zur Berechnung der Heiz-/Kühlraten.

### 7.3 Fehlerquellen und Vergleiche

Zur Berechnung der Vortexmittelwerte von Ozon und Heizraten wird der Nadir-Punkt jedes FURM-Pixels als Ausgangspunkt verwendet. Dies ist in zweierlei Hinsicht eine starke Vereinfachung. Einmal nimmt man an, dass es keine Variation der Parameter über die Länge des FURM-Pixel von 960 km gibt, das sind immerhin fast 2,5 Gitterpunkte der UKMO-Daten in Längengradrichtung. Desweiteren wird keine zeitliche Korrektur eingefügt. Die Messungen werden sequentiell zu verschiedenen Zeiten entlang der einzelnen GOME-Orbits durchgeführt, die UKMO-Datenfelder liegen dagegen jeweils einmal täglich für 12 Uhr UTC vor. Eine Interpolation auf den aktuellen Messzeitpunkt findet nicht statt. Bei stark variablen Temperatur- und *PV*-Felder ist der Fehler einer Einzelmessung sicher nicht vernachlässigbar. Bei Betrachtung täglicher Mittelwerte der Ozonfelder sollten sich diese Effekte aber weitgehend herausmitteln.

Die Verwendung einer festen Bodenalbedo muss zwangsläufig zu Fehlern in den Heizraten führen, weil die winterliche Nordhemisphäre nicht vollkommen eis- oder wolkenbedeckt ist. Die Größe der FURM-Pixel ist in diesem Zusammenhang problematisch, weil man es dadurch mit einer Mischung verschiedener Albeden durch Land-Wasser-Grenzen sowie mit gebrochener Bewölkung zu tun hat.

Einfache Variationen der Albedo für zwei Beispieltage in 2000 zeigen eine deutliche Abhängigkeit der Heizraten von der Bodenalbedo. Reduziert man die Bodenalbedo von 0,9 auf 0,5, so steigt die diabatische Ozonänderung von 5,8 ppbv/Tag (–1,5 ppbv/Tag) auf 6,8 ppbv/Tag (–0,8 ppbv/Tag)

am 22. Februar 2000 (in Klammern 13. März 2000) aufgrund stärkerer Absinkprozesse infolge der geringeren Abstrahlung vom Boden. Dieser Effekt verläuft annähernd linear mit der Albedo.

Die Variation des CO<sub>2</sub>-Gehalts zeigt innerhalb des beobachteten Anstiegs von CO<sub>2</sub> keine signifikante Auswirkung auf die diabatische Absinkrate. Ein Unsicherheitsfaktor bleibt das Wasserdampfprofil sowohl in der Troposphäre als auch in der Stratosphäre, weil das Profil sehr variabel sein kann und nicht aktuell bestimmt wird.

Im Allgemeinen wird das Verfahren die Heizraten aufgrund der Albedoeffekte überschätzen und damit die Absinkraten unterschätzen, weil auch immer nur Heizraten im sichtbaren Bereich des Vortex ermittelt werden. Bei einem Vortexmittel tragen aber die Heizraten aus dem dunklen Teil ebenso bei und sollten tendenziell höhere Absinkvorgänge verursachen. Auch aus diesem Grund sind die mit FUDD berechneten Absinkraten zu Beginn der Messperiode eher unterschätzt. Gegen Ende liegen alle Vortexbereiche in der Sonne und dieser Effekt spielt dann eine untergeordnete Rolle.

Vergleiche diabatischer Heizraten, bestimmt mit unterschiedlichen Modellen auf der Basis verschiedener Messmethoden, sind in Abbildung 7.1 dargestellt. Hier sind Messungen von ASUR (Sterne), GOME (Raute), RAM (graue Linie) und SLIMCAT (dünne Linie) als Funktion der Zeit für das Jahr 2000 aufgetragen. Das Radiometer für Atmosphärische Messungen RAM, ein bodengebundenes Mikrowellenradiometer, ist Teil des NDSC-Netzwerkes (*Network for the detection of stratospheric change*) und seit 1994 in Ny-Ålesund auf Spitzbergen stationiert<sup>1</sup> (Sinnhuber, 1999; Langer, 1999). ASUR ist ein Radiometer, das im Submillimeterbereich misst (Bremer et al., 2001; von König, 2000). Es fliegt seit 1991 während verschiedener Kampagnen an Bord der *FALCON*, eines Learjets, der für arktische Messungen vom DLR betrieben wird. Das Chemie-Transport-Modell SLIMCAT wird in Abschnitt 10.3 genauer beschrieben. Alle Verfahren bestimmen dabei unter anderem Ozonprofile mit unterschiedlichen vertikalen Auflösungen. ASUR, RAM und GOME verwenden das gleiche STM zur Bestimmung der Heizraten, jedoch unterscheiden sie sich in der Wahl der Eingabeparameter. Hier verwenden die einzelnen Verfahren jeweils ihre eigene Ozonprofilberechnungen.

---

<sup>1</sup> <http://www.ram.uni-bremen.de/>

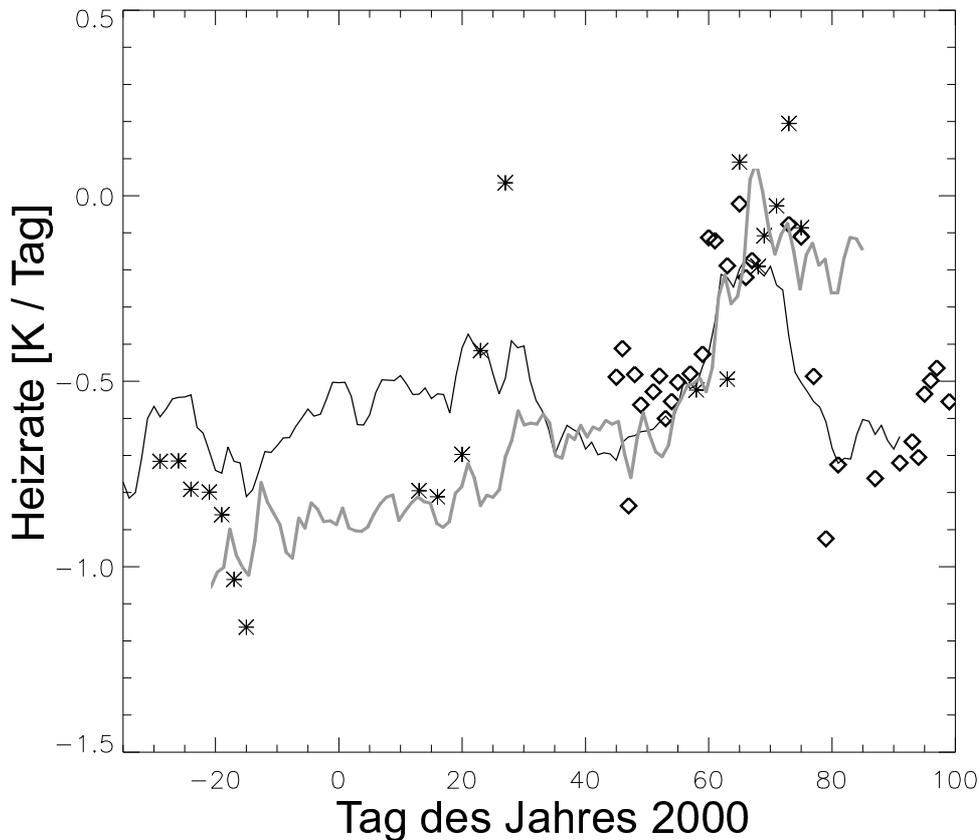


Abbildung 7.1: Vergleich der diabatischen Heizraten [K/Tag] auf der 475K Isentrope für die Wintersaison 1999/2000. Sterne kennzeichnen ASUR, Rauten GOME, die graue, dicke Linie RAM Messungen und die dünne Linie SLIMCAT Modellrechnungen. Abbildung entnommen aus Bremer et al. (2001).

Weil RAM und ASUR nicht im sichtbaren, sondern im Millimeterwellenbereich messen, sind sie unabhängig von der Beleuchtungssituation. GOME ist in dieser Hinsicht begrenzt und liefert erst ab etwa Mitte Februar Ergebnisse. Wie bereits erläutert, zeigt sich hier, dass die GOME-Heizraten im Februar eher zu hoch liegen. Diese Periode ist die Zeit, wo der höchste Ozonabbau stattfindet (Abschnitt 10.1). Das stärkste Absinken findet aber früher statt, wenn der ganze Vortex im Dunklen liegt. Dadurch unterschätzt GOME die dynamischen Effekte. Trotz der starken Unsicherheiten in den Berechnungen von Heizraten (Sinnhuber, 1999) liefern die einzelnen Modelle gute Übereinstimmungen (Bremer, 2001). Die starke Va-

rianz der ASUR-Berechnungen ist hauptsächlich auf die mangelnde Abdeckung in der Beobachtung des Vortex zurückzuführen.

Allgemein findet über den ganzen Winter eine Abkühlung der Luftmassen auf der 475 K Isentropen statt. Diese reicht bis in den April, wie die SLIM-CAT und GOME Berechnungen zeigen. Die stärkste Abkühlung findet man Mitte Dezember, wo große Gebiete der Polarregion in der Polarnacht liegen. Alle Verfahren können auch die Stratosphärenwärmung Anfang März, die zum Aufbrechen des Vortex führte, wiedergeben (siehe Abschnitt 10.1.1).

**Teil III**

**Ozon**

## Überblick zu Teil III: Ozon

In diesem Abschnitt wird explizit auf das Spurengas Ozon eingegangen. Die Ergebnisse von Untersuchungen mit GOME Daten werden gezeigt. Diese werden in Zusammenhang mit den dynamischen und chemischen Verhältnissen der winterliche Stratosphäre in nördlichen Breiten gesetzt. Weiterhin werden Ergebnisse der Gesamtzonnmessungen von GOME präsentiert und dynamische Phänomene wie das Ozonminiloch untersucht.

- In *Kapitel 8* wird das Spurengas Ozon, seine physikalischen Eigenschaften und seine Bedeutung für die stratosphärische Chemie vorgestellt.
- In *Kapitel 9* werden die dynamischen Grundlagen eines Ozonminilochs behandelt und die GOME Ergebnisse anhand eines Beispielfalls diskutiert. Weiterhin werden die mit GOME beobachteten Ozonvariabilitäten untersucht und Trendanalysen aus TOMS-Daten mit GOME-Ergebnissen ergänzt.
- In *Kapitel 10* werden Ergebnisse der Berechnungen für die Winter/Frühjahrsperioden von 1997 bis 2000 in Bezug auf chemische Ozonverluste im Vortex in der Stratosphäre dargestellt. Diabatische Effekte und die Abgeschlossenheit des Vortex werden für die einzelnen Jahre diskutiert. Vergleiche mit Sondendaten, dem chemischen Transportmodell SLIMCAT und anderen Instrumenten werden abschließend präsentiert.

## 8 Das Atmosphären gas Ozon

Das Atmosphären gas Ozon ist seit über 150 Jahren bekannt. Es hat seinen Namen vom Chemiker Christian F. Schönbein, der bei Experimenten mit elektrischen Entladungen ein Gas mit einem besonderen Geruch gefunden hatte. Im Griechischen steht *ozein* für »riechen«. Im Jahre 1881 wurde das Ozonspektrum im Ultravioletten von Walter Hartley vermessen, sowie von Chappuis ein Jahr früher das Spektrum im Sichtbaren. 1890 hat Huggins die Ozonabsorptionsbanden im Bereich zwischen 320 und 360 nm gefunden (Brasseur et al., 1999).

### 8.1 Atmosphärenphysikalische Eigenschaften

Das Ozonmolekül besteht aus drei Sauerstoffatomen, die unter einem Bindungswinkel von  $116,5^\circ$  angeordnet sind. Aufgrund seiner Ladungsverteilung ist Ozon ein elektrischer Dipol mit einem permanenten Dipolmoment. Die Absorptionseigenschaften des Ozons gliedern sich in den einzelnen Wellenlängenbereichen wie folgt. Im Mikrowellenbereich hat Ozon bei 300 GHz Absorptionslinien durch Rotationsübergänge. Im infraroten Spektralbereich besitzt es zwei schwache Vibrations-Rotationsübergänge bei  $9,01\mu\text{m}$  und  $14,2\mu\text{m}$  und eine starke Bande bei  $9,6\mu\text{m}$ . Im ultravioletten und sichtbaren bis nah-infraroten Spektralbereich liegen die Ozon-Kontinuumsübergänge. Ozon dissoziiert und die überschüssige Energie wird von den Spaltprodukten aufgenommen. Der Absorptionsquerschnitt  $C_a$  von Ozon [ $\text{cm}^2 \text{Molekül}^{-1}$ ] steigt ab 200 nm stark an. Das Maximum von etwa  $1,1 \cdot 10^{-17} \text{cm}^2$  liegt im Hartley-Kontinuum bei 255 nm. Um 300 nm fangen die Huggins-Banden an, die bis etwa 370 nm reichen (Molina und Molina, 1986; Bass und Paur, 1985; Burrows et al., 1999a). Durch gleichzeitige Elektronen-, Schwingungs- und Rotationsübergänge des  $\text{O}_3$ -Moleküls

kommt es zu den beobachteten Bandenstrukturen. Im sichtbaren Wellenlängenbereich zwischen 450 und 750 nm zeigt das Ozon breitbandige Absorptionsstrukturen mit einem Absorptionsmaximum bei 600 nm, die Chappuis-Banden genannt werden.

Der Absorptionsbereich, der von GOME abgetastet wird, reicht von 240 nm im Ultravioletten über den sichtbaren Bereich bis ins nahe Infrarot bei 790 nm (Burrows et al., 1999a). Der Absorptionsquerschnitt  $C_a$  [ $\text{cm}^2$ ] von Ozon ist als Funktion der Wellenlänge für diesen UV/sichtbaren Bereich in Abbildung 8.1 dargestellt.

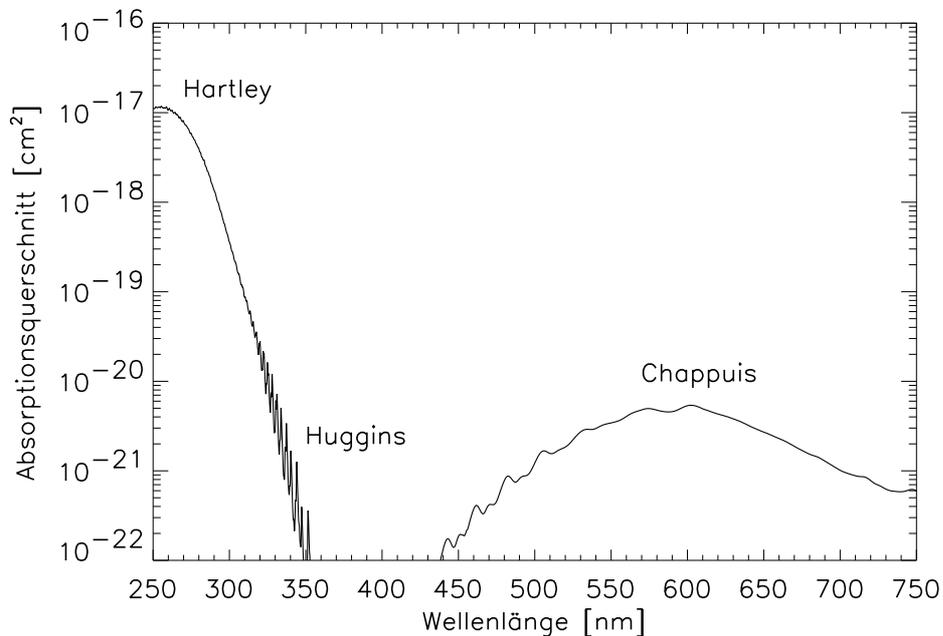


Abbildung 8.1: Der Absorptionsquerschnitt [ $\text{cm}^2$ ] von Ozon als Funktion der Wellenlänge im GOME-Messbereich zwischen 250 und 750 nm. Dargestellt sind die Hartley-Huggins-Banden im UV-Spektralbereich und die Chappuis-Banden im sichtbaren Wellenlängenbereich.

Die molekularen Energieniveaus sind quantisiert und Übergänge erfolgen bei diskreten Wellenlängen. Im klassischen Bild interagiert das Molekül mit dem externen elektromagnetischen Feld der Frequenz  $\nu^1$ , wenn es

<sup>1</sup> Die Energie  $E$  [J] eines Strahlungsquant berechnet sich aus  $h\nu$ , wobei  $h$  das Plancksche

einen transienten Dipol besitzt, der mit dieser Frequenz oszilliert. Quantenmechanisch ist die Intensität eines Absorptionsübergangs proportional zum Quadrat des Übergangsdipols  $\mu$ , der definiert ist als

$$\mu_{1,2} = \int \psi_1^* \mu \psi_2 d\tau, \quad (8.1)$$

wobei  $\psi_1$  und  $\psi_2$  die Wellenfunktionen für die zwei Energielevel sind und  $\mu$  der Dipolmoment-Operator. Damit ein Übergang stattfinden kann, muss das Integral von Null verschieden sein. Für Rotationsübergänge muss das Molekül ein permanenten elektrischen Dipol besitzen. Vibrationsübergänge existieren, wenn das Dipolmoment des Moleküls sich durch die Vibration ändert. Bei elektronischen Übergängen kann die Energie in der Größenordnung der molekularen Bindungsenergie liegen, so dass beispielsweise Ozon mit  $105 \text{ kJ mol}^{-1}$  photodissoziieren kann.

Im Bereich von 190 bis 270 nm ist die Temperaturabhängigkeit von Ozon schwach ausgeprägt. Zu größeren Wellenlängen spielt der Temperatureffekt jedoch eine wichtige Rolle für die Größe des Absorptionsquerschnittes (Burrows et al., 1999a). Bedingt durch variierende Populationen in den verschiedenen vibrationellen und rotationellen Quantenzuständen des Ozonmoleküls sind die Absorptionsquerschnitte bei höheren Temperaturen größer. Die Querschnitte sind dabei in nicht-linearer Weise proportional zur Temperatur. Zudem ist der Effekt in den Maxima größer als in den Minima (Molina und Molina, 1986).

In der Stratosphäre im Wellenlängenbereich von 180 bis 220 nm, der ein Teilbereich der UV-C Strahlung (200-280 nm) ist, kontrollieren Sauerstoff und Ozon gemeinsam die Eindringtiefe der solaren Strahlung. Hin zu größeren Wellenlängen bis etwa 320 nm absorbiert in erster Linie Ozon die für die Biosphäre schädliche UV-B-Strahlung (280-320 nm). UV-A-Strahlung (320-400 nm) wird dagegen nur schwach von Ozon absorbiert, ist aber biologisch gesehen weniger schädlich als UV-B. Im UV hat  $C_a$  sein Maximum bei etwa 250 nm. Bis 300 nm ist der Verlauf relativ glatt und nimmt mit zunehmender Wellenlänge um 2 Zehnerpotenzen ab. In den Huggins-Banden oberhalb von etwa 300 nm variiert der weiter abnehmende Querschnitt stark

---

Wirkungsquantum und  $\nu$  die Frequenz der Strahlung ist. Frequenz und Wellenlänge  $\lambda$  sind über die Lichtgeschwindigkeit  $c$  [ $\text{m s}^{-2}$ ] durch die Gleichung  $c = \lambda \nu$  verknüpft.

mit der Wellenlänge. Ein lokales Maximum von  $C_a$  liegt um 600nm in der Chappuis-Bande.

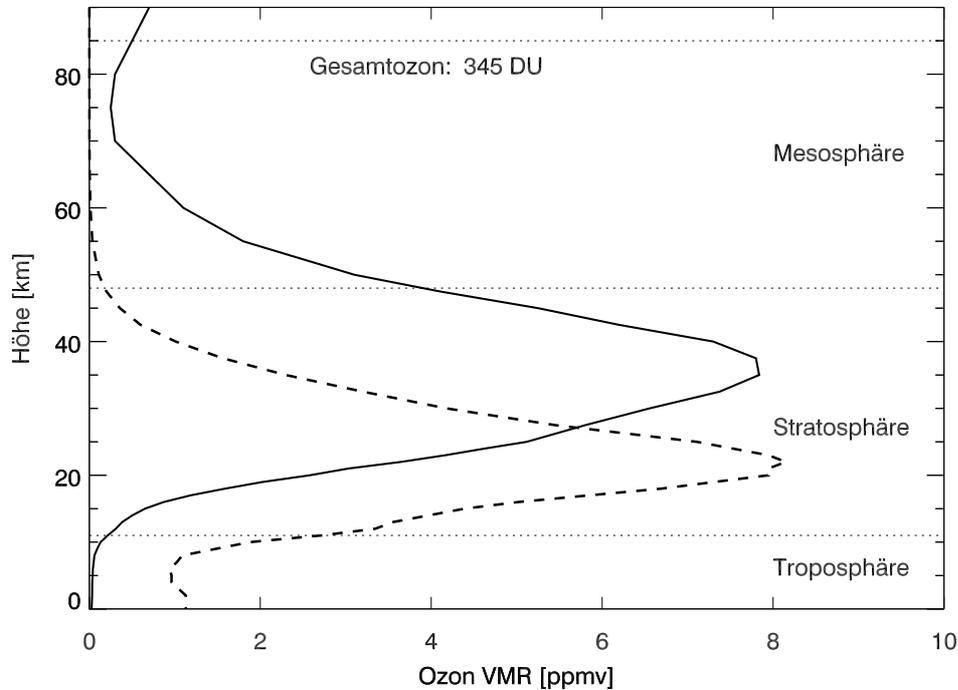


Abbildung 8.2: Ozonvolumenmischungsverhältnis  $VMR$  [ppmv] als Funktion der Höhe  $z$  [km]. Die gestrichelte Linie zeigt die Ozonkonzentration [ $\text{cm}^{-3}$ ] normiert auf das Maximum des VMR-Profiles zum Vergleich. Das Ozonkonzentrationsmaximum liegt bei etwa  $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Die gepunkteten Linien stellen die Grenzen der atmosphärischen Regime dar.

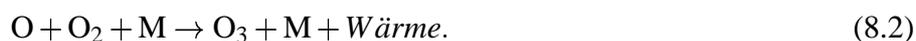
In Abbildung 8.2 sind Volumenmischungsverhältnis [ppmv] und Teilchenzahldichte (ohne Einheiten) für die US-Standardatmosphäre von LOW-TRAN (Kneizys et al., 1983, 1988) dargestellt. Die Region, die gemeinhin als Ozonschicht betrachtet wird, liegt in der Stratosphäre etwa zwischen 15 und 50 km. Die maximale Anzahl von Ozonmolekülen ist in etwa 20 km Höhe zu finden ( $4\text{--}6 \cdot 10^{18} \text{ Teilchen m}^{-3}$ ). Die Höhe des Ozonkonzentrationsmaximums variiert sehr stark mit dem Breitengrad. Zu hohen Breiten sinkt die Maximumshöhe ab, in Richtung Tropen steigt sie auf bis 25 km an (Krueger, 1995). Während die Konzentration oberhalb des Maximums annähernd exponentiell abnimmt, ist Richtung Erdboden ein linearer Abfall bis in die Tropopausenregion bei ungefähr 10 km festzustellen. Oberhalb

von 50 km ist die Ozonkonzentration vernachlässigbar klein. In der Troposphäre ist die Ozonkonzentration vergleichsweise gering und mit der Höhe nahezu gleichverteilt. Das Volumenmischungsverhältnis steigt im Vergleich zur Konzentration ab der oberen Troposphäre bis in etwa 35 km Höhe von annähernd 0 ppm auf fast 5 ppm an. Die Aufteilung zwischen Luft und Ozon verschiebt sich also in Richtung Ozon. Dies hängt mit der vermehrten Bildung von Ozon in der Höhe aus Sauerstoff zusammen.

## 8.2 Die Ozonchemie in der Gasphase

In diesem Abschnitt soll eine kurze Einführung in die wichtigsten chemischen Prozesse der Stratosphäre gegeben werden, wie sie für die globale Ozonverteilung wichtig sind. Eine umfassende Darstellung der stratosphärischen Chemie findet sich bei Brasseur et al. (1999) und Wayne (1999). Eine gute Zusammenfassung der Geschichte der Forschung zum stratosphärischen Ozonabbau ist von Solomon (1999) verfasst worden.

Ozon bildet sich durch einen Dreierstoß von atomarem und molekularem Sauerstoff unter Mithilfe eines inerten Stoßpartners M (zum Beispiel  $N_2$ ), der für die Stabilisierung<sup>2</sup> der Reaktion benötigt wird:



Diese Reaktion ist exotherm, durch die Synthese von Ozon wird hauptsächlich die Wärme freigesetzt, die für das Temperaturprofil in der Stratosphäre verantwortlich ist. Um genügend Wärme zu erzeugen, muss ständig atomarer Sauerstoff zur Verfügung stehen. Dies wird über die Photolyse von Ozon gewährleistet. Die Reaktion wurde bereits von Chapman (1930) für die Stratosphäre vorgeschlagen. Voraussetzung für diesen Prozess der Ozonbildung ist das Vorhandensein atomaren Sauerstoffs. Dieses Radikal wird über



---

<sup>2</sup> Energie- und Impulssatz müssen gleichzeitig erfüllt sein.

bei Wellenlängen  $\lambda < 242\text{ nm}$  photochemisch erzeugt. Die Reaktion ist stark von Höhe und Sonnenstand abhängig. Die Sauerstoffatome befinden sich dabei im Grundzustand  $\text{O}(^3\text{P})$  und können wieder rekombinieren. Sie verläuft in der Stratosphäre aber sehr langsam, ist jedoch in der oberen Mesosphäre und Thermosphäre wichtig.

Ozon kann durch ultraviolette ( $\lambda < 320\text{ nm}$ , Hartley-Huggins Banden) und sichtbare beziehungsweise IR- ( $\lambda < 1140\text{ nm}$ , Chappuis-Banden) Strahlung wieder dissoziiert werden:



Dabei entsteht für  $\lambda < 320\text{ nm}$  elektronisch angeregter ( $190\text{ kJ mol}^{-1}$ ) und sehr reaktiver Sauerstoff  $\text{O}(^1\text{D})$ . Ansonsten wird Sauerstoff im Grundzustand  $\text{O}(^3\text{P})$  produziert. Der atomare Sauerstoff kann wiederum mit Ozon reagieren und dabei molekularen Sauerstoff bilden:



Die endotherme Reaktion 8.5 verläuft jedoch sehr langsam, weil ihre Aktivierungsenergie mit  $18\text{ kJ mol}^{-1}$  vergleichsweise groß ist und der nötige angeregte Sauerstoff  $\text{O}(^1\text{D})$  sehr schnell über Quenching durch Kollisionen mit  $\text{N}_2$  und  $\text{O}_2$  wieder in den Grundzustand überführt wird.

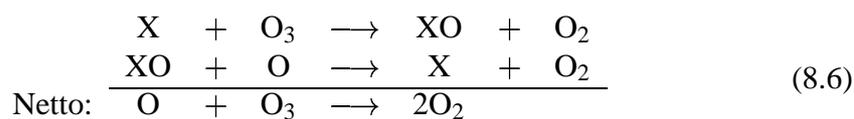
Bildung (8.2) und photochemische Zersetzung (8.4) von Ozon verlaufen in der Stratosphäre sehr schnell, die Geschwindigkeitskonstanten liegen in der Größenordnung von Minuten. Es gibt somit einen schnellen Austausch von  $\text{O}_3$  und  $\text{O}$ . Die Summe der beiden Komponenten bleibt dabei annähernd konstant, sie wird auch ungerader Sauerstoff  $\text{O}_x$  (*odd oxygen*) genannt.

Aus den obigen Reaktionsgleichungen, den Chapman-Gleichungen, und den zugehörigen Geschwindigkeitskonstanten ergibt sich, dass die Abbau-mechanismen zu langsam sind, um die gemessenen Ozonkonzentrationen in der Stratosphäre zu erklären. Während die Lebensdauer von  $\text{O}_3$  in der mittleren Atmosphäre oberhalb  $40\text{ km}$  annähernd konstant ist und im Bereich von Minuten liegt, steigt die Lebensdauer in der unteren Stratosphäre auf bis zu einer Stunde an. Die Lebensdauer von  $\text{O}$  ist dagegen stark höhenabhängig. Unterhalb von  $40\text{ km}$  hat  $\text{O}$  eine Lebensdauer von unter einer

Sekunde, in 100 km Höhe liegt die Lebensdauer im Bereich von Jahren. Die chemische Lebensdauer von  $O_x$  hat ihr Minimum von etwa 1 Stunde bei etwa 60 km Höhe und nimmt mit abnehmender Höhe wieder zu. Sie kann in 20 km Höhe im Bereich mehrerer Monate liegen. Das ist vergleichbar mit den Zeitkonstanten des Transports durch die mittlere stratosphärische Zirkulation, insbesondere in zonaler Richtung (Brasseur et al., 1999). Sauerstoffatome liegen in der unteren Stratosphäre zudem nur in vergleichsweise geringen Mengen vor. Die vorhandenen Atome müssen also sehr schnell mit einem Ozon-Molekül reagieren.

Für die Reaktionen (8.3) und (8.4) wird Sonnenlicht benötigt. Damit können die Komponenten dieser Reaktionen einen Tagesgang aufweisen. Nach Sonnenuntergang wird kein atomarer Sauerstoff mehr produziert und der Vorhandene rekombiniert mit molekularem Sauerstoff, so dass das Verhältnis von O zu  $O_3$  kleiner wird. Dadurch kann der Ozonabbau (8.5) nicht mehr stattfinden und die Tagesschwankungen des stratosphärischen  $O_3$  sind somit geringer. Oberhalb von etwa 42 km treten die Tagesschwankungen deutlicher hervor, weil die  $O_3$ -Photolyse am Tag schneller und die Umwandlung von O nach  $O_3$  langsamer geschieht (Wayne, 1999).

Es gibt weitere effektive Mechanismen des Ozonabbaus, die als katalytische Zyklen bekannt sind. Hier verbrauchen sich die ozonabbauenden Stoffe nicht und können bereits in geringen Konzentrationen erhebliche Wirkung entfalten. Die Zyklen sind von der Form



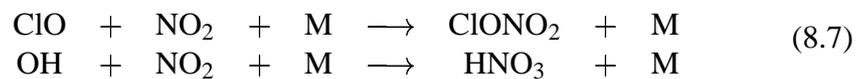
wobei X die reduzierte und XO die oxidierte Form des Katalysators darstellt. Diese katalytischen Prozesse waren seit den 50er Jahren bekannt, als Bates und Nicolet (1950) die »natürlichen« Katalysatoren  $X = \text{OH}$  und  $\text{XO} = \text{HO}_2$  vorschlugen, die aus Wasserdampf entstehen. Später wurden die Stickoxide  $\text{NO}_x$ <sup>3</sup> von Crutzen (1970) als Katalysatoren entdeckt ( $X = \text{NO}$  und  $\text{XO} = \text{NO}_2$ ). Die Auswirkung der Stickoxide auf Ozon ist viel stärker als die von natürlichem  $\text{HO}_x$ . Die Menge an  $\text{NO}_x$  in der Atmosphäre hat anthropogene Anteile aus den Emissionen hochfliegender Überschallflug-

<sup>3</sup> Die kurzlebigen Radikale NO und  $\text{NO}_2$  werden zu  $\text{NO}_x$  zusammengefasst.

zeuge (Zellner et al., 1999). Ebenfalls in den 70er Jahren wurden die anthropogen hergestellten Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKW) als Ursache für den katalytischen Ozonabbau von Molina und Rowland (1974) postuliert.

FCKWs sind organische Verbindungen von Kohlenwasserstoffen, bei denen die H-Atome durch Cl- beziehungsweise F-Atome ersetzt wurden. Diese Gase sind von großer thermischer und chemischer Beständigkeit, zumindest in der Troposphäre und fanden Verwendung als Kältemittel in Kühlschränken, Treibmittel in Spraydosen und Feuerlöschern und zum Aufschäumen von Styropor. Durch ihre physikalisch-chemischen Eigenschaften können sie unbeeinflusst durch die Troposphäre aufsteigen und in die Stratosphäre gelangen. Hier werden die FCKWs durch die kurzweilige UV-Strahlung aufgespalten und die Halogene freigesetzt.

Der Zyklus der Chlorverbindungen ( $X = \text{Cl}$  und  $\text{XO} = \text{ClO}$ ) ist als der wichtigste Ozonabbaumechanismus in der Stratosphäre verifiziert worden (Molina und Rowland, 1974; Solomon, 1999). Weitere katalytische Zyklen wurden für andere Halogene wie Brom- und Jodverbindungen vorgeschlagen ( $X = \text{Br}$ , I und  $\text{XO} = \text{BrO}$ , IO). Dies führte zu einer starken Ausweitung der Reaktionsmöglichkeiten, insbesondere durch die Kopplung von Zyklen untereinander. Durch die Kopplung kommt es auch zur Bildung stratosphärisch langlebiger Substanzen (Reservoir):



In diesen Reaktionen werden die freien Radikale ClO und OH in die Reservoirgase Chlornitrat  $\text{ClONO}_2$  und Salpetersäure  $\text{HNO}_3$  (Denoxifizierung) überführt. Die Freisetzung reaktiver Substanzen aus den Reservoiren über photochemische Prozesse erfolgt nur sehr langsam. Das Konzept der chemischen Partitionierung des Chlors zwischen Formen, die chemisch inert gegen Ozon ( $\text{HCl}$ ,  $\text{ClONO}_2$ ) sind, und solchen, die Ozon zerstören ( $\text{Cl}$ ,  $\text{ClO}$ ) ist grundlegend für die heterogene Chemie (Solomon, 1999).

### 8.3 Die heterogene Ozonchemie

Die jahreszeitliche Produktion von Ozon wird durch die Strahlungsleistung der Sonne und die nahezu konstante globale Verteilung von molekularem

Sauerstoff bestimmt. Diese Faktoren und die jährliche Erzeugungsrate von Ozon sind im Jahresmittel annähernd konstant. Eine Änderung der atmosphärischen Ozongehalte, wie sie über das ganze Jahr gemessen werden, kann somit nur durch eine Änderung der atmosphärischen Senken bedingt sein. Hier ist die Zunahme von Radikalen, die in den katalytischen Zyklen von Bedeutung sind, zu bedenken. Sie wird unter anderem ausgelöst durch die anthropogene Einbringung von FCKWs in die Atmosphäre.

Die Verlustprozesse von Ozon, die durch Chlor und weitere Gase hervorgerufen werden, sind reine Gasphasen-Reaktionen. Sie treten hauptsächlich in der mittleren und oberen Stratosphäre in mittleren bis niedrigen Breiten auf, weil dort genügend freie O-Atome zur Verfügung stehen.

Farman et al. (1985) beschrieben einen dramatischen Ozonabbau, der über der Antarktis in der Zeit zwischen September und November bereits seit Beginn der achtziger Jahre eingetreten ist. Das Phänomen dieses auf den antarktischen Kontinent begrenzten Ozonlochs, das vornehmlich in der unteren Stratosphäre zwischen 15 und 25 km (dem Maximum der Ozonschichtdicke) auftritt, war mit den damals bekannten Reaktionsgleichungen nicht zu erklären. Denn in der unteren antarktischen Stratosphäre im Bereich der Polarnacht liegen nicht genügend O-Atome für katalytische Reaktionen vor. Die Chemie, die zur Bildung des Ozonlochs führt, basiert auf Reaktionen, die an Phasengrenzen (gas/flüssig oder gas/fest) oder in der homogenen Flüssigphase stattfinden. Diese Mehrphasenchemie wird auch heterogene Chemie genannt.

Durch die neuere Atmosphärenforschung in den 90er Jahren (Zellner et al., 1999) wurden die Mechanismen identifiziert, die eine solche drastische Ozonerstörung bewirken. Grundlage für das Ozonloch ist die eingeschlossene Luftmasse im Polarwirbel, in der im antarktischen Winter sehr tiefe Temperaturen auftreten können. In dieser kalten unteren Stratosphäre entstehen die sogenannten polaren stratosphärischen Wolken (PSC: *polar stratospheric cloud*). PSCs sind kleine luftgetragene Partikel, die aus Schwefelsäure  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , Salpetersäure  $\text{HNO}_3$  und Wasser  $\text{H}_2\text{O}$  in variablen Anteilen bestehen. Sie werden zwar regelmäßig im Bereich des antarktischen Vortex beobachtet, sind in der Arktis aber relativ selten und in kleineren Gebieten gefunden worden (Hansen und Hoppe, 1997).

PSCs entstehen in der unteren Stratosphäre bei Temperaturen unterhalb etwa  $-70^\circ\text{C}$ , wenn flüssige Tröpfchen, aus  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und  $\text{H}_2\text{O}$  (Schwefelsäure-

Aerosole) bestehend, anfangen,  $\text{HNO}_3$  und andere lösliche Spurengase aufzunehmen. Unterhalb von etwa  $-81^\circ\text{C}$  wachsen diese Teilchen im Volumen stark an. Solche Teilchen werden als Typ-1-PSCs bezeichnet. Zu ihnen gehört das feste  $\text{NAT} = \text{HNO}_3 \times 3 \text{H}_2\text{O}$  (*Nitric Acid Trihydrate*, Typ-1a-PSC). Typ-1b PSCs bestehen dagegen aus flüssigen Bestandteilen. Bei Temperaturen unter etwa  $-85^\circ\text{C}$  können Wassereiskristalle in den Teilchen entstehen (Typ-2-PSCs).

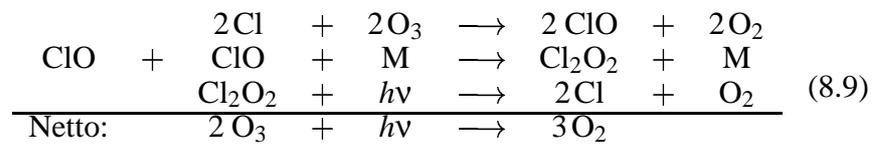
Wahrscheinlich sind die flüssigen PSCs die Träger der heterogenen Chemie zur Chloraktivierung, feste PSCs (1a, 2) tragen dagegen zur Denitrifizierung bei. Denitrifizierung meint die Entfernung von  $\text{NO}_y$  durch Aufnahme von  $\text{HNO}_3$  in den Wolkenteilchen und vertikalen Transport durch Ausschneien solcher Teilchen. Das gleiche Phänomen tritt bei der Dehydrierung auf, wobei feste Wassertropfen bis in die Troposphäre sedimentieren können (Voemel et al., 1997). Dies ist ein irreversibler Effekt, weil die abgesunkenen Teilchen nach erneutem Verdampfen das  $\text{NO}_y$  in tieferen Schichten zur Verfügung stellen (Hintsä et al., 1998; Zellner et al., 1999).

An den PSC-Teilchen können in der Polarnacht folgende heterogene Reaktionen



auch ohne Einwirkung von Sonnenlicht ablaufen. Die entstehende Salpetersäure wird effizient in die PSCs eingebunden. Das Anwachsen von PSC-Partikeln in einer gegebenen Höhengschicht kann zu deren Entfernung aus dieser Schicht durch Sedimentation führen. Dies wird beim Einbinden von Wasser in die Wolkenteilchen als Dehydrierung bezeichnet. So verbleiben die aktivierten Chlorverbindungen  $\text{Cl}_2$  und  $\text{HOCl}$ , die beim ersten Sonnenschein im Frühjahr sehr schnell photodissoziieren können, in der gegebenen Höhe.

Die Chloratome können mit Sauerstoff zu  $\text{ClO}$  weiter reagieren. Weil aber in der unteren Stratosphäre bei niedrigen Sonnenständen die Konzentration atomaren Sauerstoffs sehr gering ist, läuft der normale katalytische Abbauzyklus (8.6) nicht ab. Stattdessen kann der katalytische  $\text{ClO}$ -Dimer-Zyklus anlaufen, der bei tiefen Temperaturen sehr effizient ist (Molina und Molina, 1987):



Dieser Zyklus ist Verursacher für den bekannten Ozonabbau über den Winterpolen. Neben der Temperaturabhängigkeit bei der Bildung von PSCs, die für die heterogene Chloraktivierung essentiell sind, ist die Kinetik des Dimer-Zyklus stark temperaturabhängig, weil  $\text{Cl}_2\text{O}_2$  thermisch instabil und nur bei tiefen Temperaturen möglich ist. Erwärmt sich die polare Stratosphäre wieder, wird dieser Zyklus unterbrochen.



## **9 Dynamik des Ozonfeldes**

Die globale Verteilung des Ozons ist sowohl zeitlich als auch räumlich sehr variabel und wird von dynamischen und chemischen Prozessen (vergleiche Abschnitt 8.2) geprägt. Die Gesamtmenge an Ozon kann beispielsweise von 100 DU im südhemisphärischen Ozonloch bis zu 550 DU in warmen nordhemisphärischen Frühjahren variieren. Zur Bestimmung der globalen Ozonverteilung ist ein Netzwerk aus Satelliteninstrumenten, Bodenmessstationen und Ballonsondierungen aufgebaut worden (Burrows et al., 1999b). Die unterschiedlichen Beobachtungsmethoden ergänzen sich hierbei gegenseitig in ihren jeweiligen spezifischen Stärken, sodass ein genaues Bild der Ozonverteilung im Laufe der Jahre gewonnen werden konnte (Zellner et al., 1999; World Meteorological Organization (WMO), 1999).

### **9.1 Allgemeine Ozonverteilung**

Die Ozonbildung findet hauptsächlich in den tropischen Regionen der mittleren Stratosphäre statt (siehe Abschnitt 8.2), wo die Sonne über ein Jahr gemittelt am stärksten einstrahlt. Die Bildungshöhe wird durch zwei gegenläufige Effekte bestimmt: die nach oben abnehmende Sauerstoffkonzentration und die mit der Höhe zunehmende UV-Strahlung. Aus den beiden begrenzenden Faktoren ergibt sich eine Höhe maximaler photosynthetischer Ozonproduktion, die bei etwa 30 km liegt.

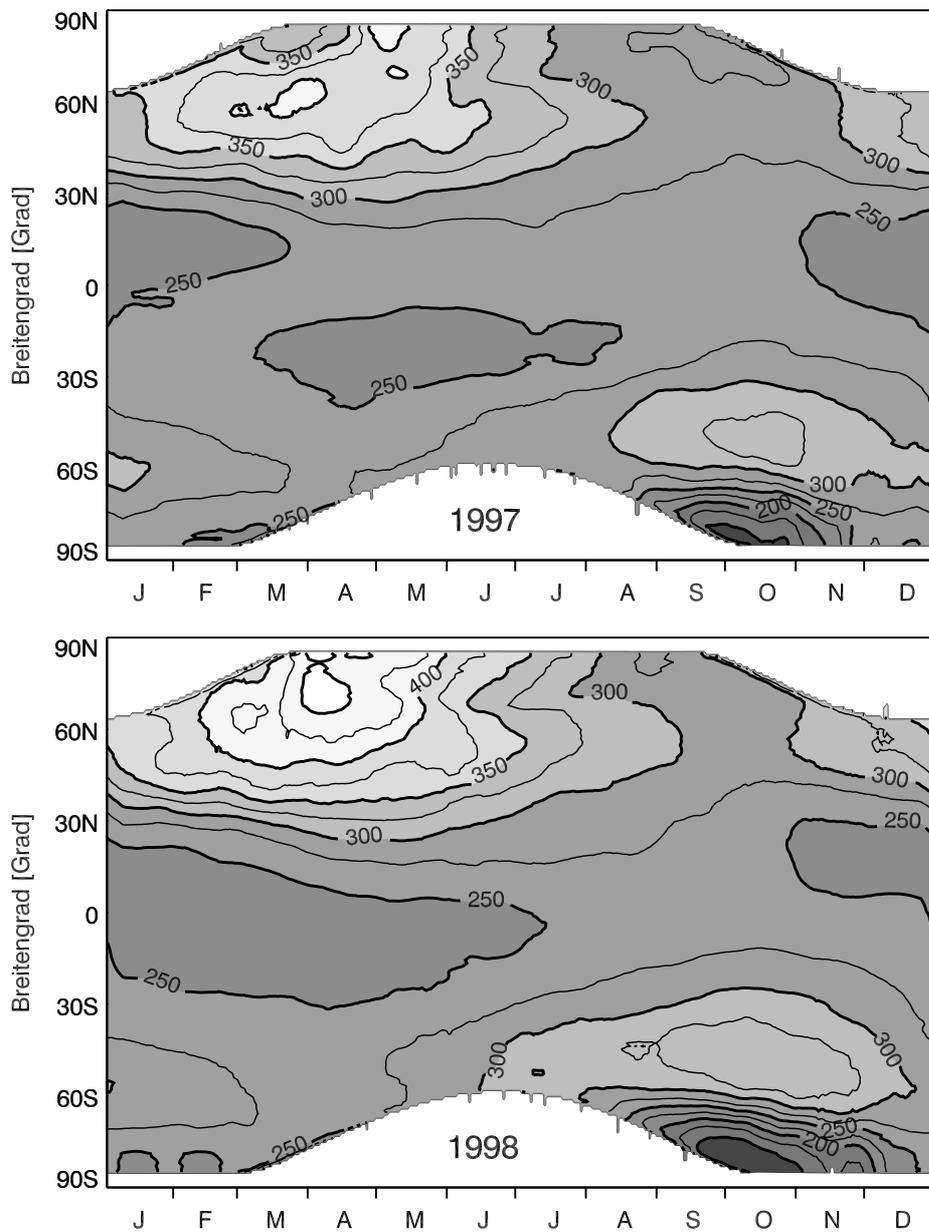


Abbildung 9.1: Zonales Gesamt ozonmittel [DU] als Funktion von Monat und geographischer Breite [°] für die Jahre 1996 (oben) und 1997 (unten). Der Abstand der Konturlinien beträgt 25DU, helle Flächen markieren hohe Ozonwerte. Die weissen Flächen zeigen Gebiete der Polarnacht an, wo keine GOME-Messungen möglich sind.

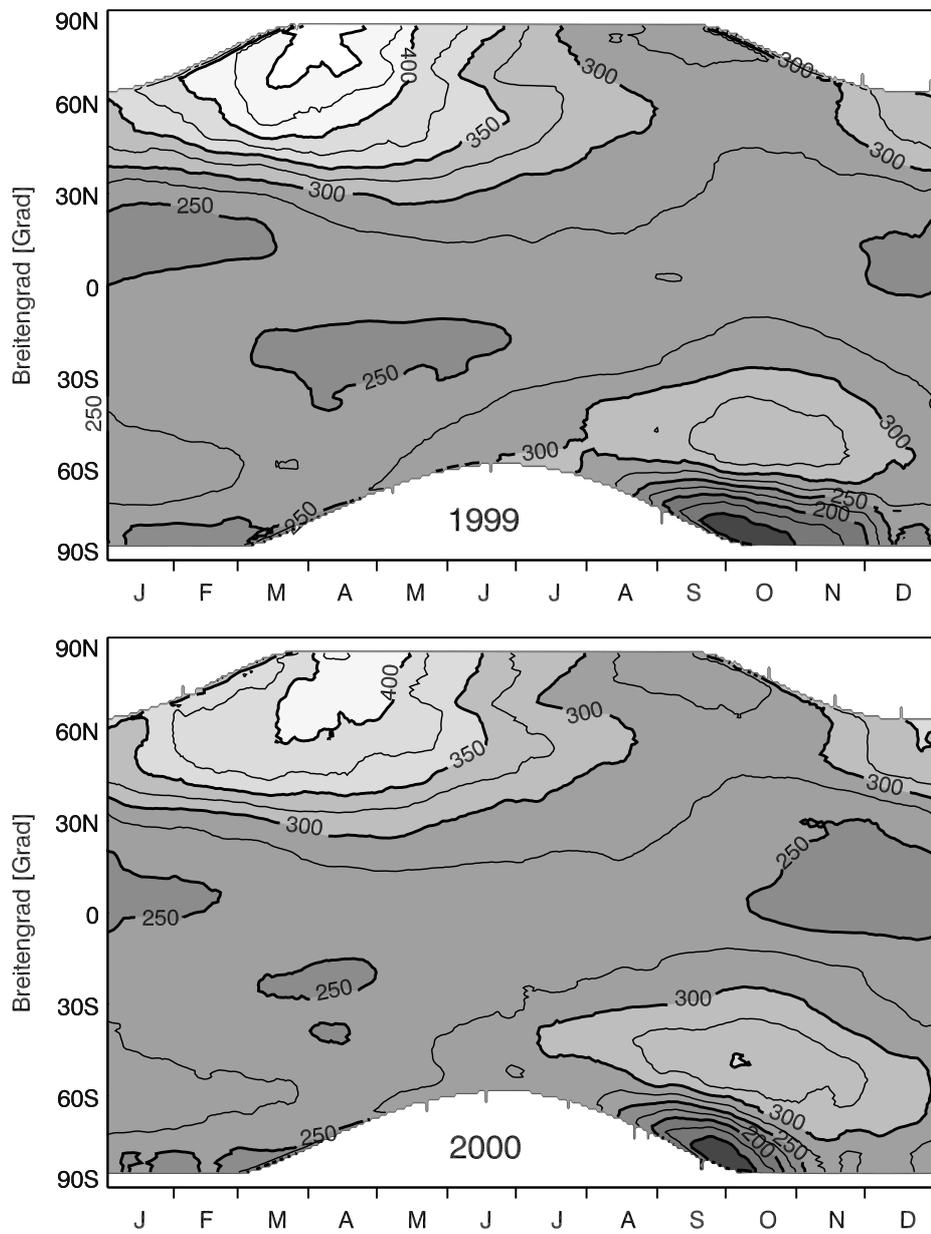


Abbildung 9.2: Wie Abbildung 9.1, jedoch für die Jahre 1999 (oben) und 2000 (unten).

Die zonale Verteilung des GOME-Gesamtozons als Funktion des Breitengrades ist für die Jahre 1997 und 1998 in Abbildung 9.1 und für die Jahre 1999 und 2000 in Abbildung 9.2 dargestellt. Man erkennt die geringen jahreszeitlichen Schwankungen in den Ozonproduktionsgebieten in Äquatornähe. Hier ist die Sonneneinstrahlung von Jahr zu Jahr nahezu konstant, abgesehen vom 11-jährigen Sonnenzyklus, der in der variablen Anzahl der Sonnenflecken seinen Ausdruck findet und vor allem im kurzwelligen Bereich zu Änderungen der Strahlungsintensität führt (Hood, 1997; Weber et al., 1998). Diese Änderungen sind aber im Gesamtozon nicht zu erkennen. Jackmann et al. (1996) finden einen Effekt im Gesamtozon aufgrund solarer UV Variationen von  $\pm 0,6\%$  in Tropen und Extratropen.

Infolge der Brewer-Dobson-Zirkulation (siehe Abschnitt 5.2.1) wird das stratosphärische Ozon aus den Produktionsgebieten in Richtung der Winterpole transportiert. Die Maxima in den Extratropen mit Ozonwerten von mehr als 400 DU im Norden entstehen, weil aufgrund der diabatischen Zirkulation ozonreiche Luft auf der Winterhalbkugel absinkt und so Ozon in der unteren Stratosphäre in mittleren Breiten angereichert wird. Ist in Höhen über 35 km die Photochemie dominant, so spielt Transport unterhalb von 25 km und allgemein in hohen Breiten im Winter und Frühjahr die tragende Rolle. Die Sonneneinstrahlung reicht dort nicht aus, um das Ozon in den tieferen Stratosphärenschichten wieder aufzuspalten. Die Höhenschicht von 25 bis 35 km stellt eine Übergangszone zwischen photochemisch und dynamisch kontrollierter Ozonmenge dar (World Meteorological Organization (WMO), 1999). Zwischen 15 und 25 km Höhe, wo sich das meiste Ozon befindet, wird die aktuelle Ozonmenge in mittleren Breiten hauptsächlich durch die stratosphärische Dynamik beeinflusst.

Ozontransporte, die mit quasi-stationären Rossby-Wellen und Wellenbrechungsereignissen verknüpft sind, spielen eine tragende Rolle für die raum-zeitliche Entwicklung des Ozons im Winter/Frühjahr. Die dreidimensionale Struktur der planetaren Wellen lässt sich beispielsweise an der Abweichung der geopotentiellen Höhe vom zonalen Mittel auf konstanten Druckflächen zeigen. Im NH-Winter bewirken die beobachteten Wellenstrukturen in Verbindung mit den mittleren Ozongradienten einen Ozontransport von Süd nach Nord, wobei die Maxima der Ozon-VMRs in der Umgebung der Minima der geopotentiellen Höhe in der unteren Stratosphäre auftreten und umgekehrt. Somit besteht eine Antikorrelation von

Gesamtozon und GPH in der untersten Stratosphäre (Hood und Zaff, 1995). Die interannuale Variabilität der quasi-stationären Wellenkomponente kann langzeitliche Veränderungen in der räumlichen Verteilung des extratropischen Ozons verursachen. Das zonal gemittelte Ozon bleibt von diesen Änderungen aber unbeeinflusst (Hood et al., 1999).

Die Brechung von Rossby-Wellen ist eine nichtlineare, transiente Störung, die einen Nettotransport von Ozon in meridionaler Richtung hervorruft. In der mittleren Stratosphäre (3–30 hPa) ergänzen die brechenden Wellen die zonal gemittelte diabatische Zirkulation durch den polwärtigen Transport von Ozon im Winter und Frühjahr. In tieferen Schichten auf isentropen Flächen, welche die obere Troposphäre der Subtropen mit der extratropischen unteren Stratosphäre verbinden, ist die Rossby-Wellen-Brechung am Stratosphären/Troposphären-Austausch beteiligt und für einen Großteil der zonal gemittelten Gesamtozonvariabilität verantwortlich. Statistische Trendanalysen zeigen, dass die zonal gemittelte *PV* in mittleren Breiten im Februar und März im Laufe der Jahre abgenommen hat, so dass es mehr antizyklonale, in Richtung Pol laufende Wellenbrechungsereignisse gab. Hierbei wird ozonarme Luft niedriger *PV* von der subtropischen oberen Tropopause in die untere Stratosphäre mittlerer Breiten transportiert. Etwa 40% des zonal gemittelten Ozonrückgangs mittlerer Breiten im Februar sowie 25% im März kann dem Langzeittrend dieses Rossby Wellenbrechungsverhaltens zugeordnet werden (Hood et al., 1999).

In Abbildung 9.3 sind GOME Ozonverteilungen für die Nordhemisphäre und vier Jahreszeiten am Beispiel der Monate März, Juni, September und Dezember 1996 dargestellt. Allgemein nimmt im Laufe des Jahres die Ozonschichtdicke ab. Minima treten im Herbst auf, danach steigt das Gesamtozon bis zum Frühjahr wieder an. Im Sommer und Herbst ist das Ozon in der Hemisphäre relativ gleich verteilt, während sich im Winter und Frühjahr Ozonmaxima in Abhängigkeit vom Längengrad ausbilden.

Die mittlere nordhemisphärische Gesamtozonverteilung ist entlang von Breitenkreisen im Winter/Frühjahr durch dynamisches »Forcing« der quasi-stationären planetaren Wellen (siehe Abschnitt 5.2) stark asymmetrisch. Die Kontinente in mittleren Breiten sind im Winter vergleichsweise kalt mit ausgedehnten Flächen hohen Bodendrucks, während die Ozeane warm mit niedrigen Bodendrücken sind. In der unteren Troposphäre existieren deshalb quasi-stationäre Tiefdruckgebiete hauptsächlich über den Ozeanen,

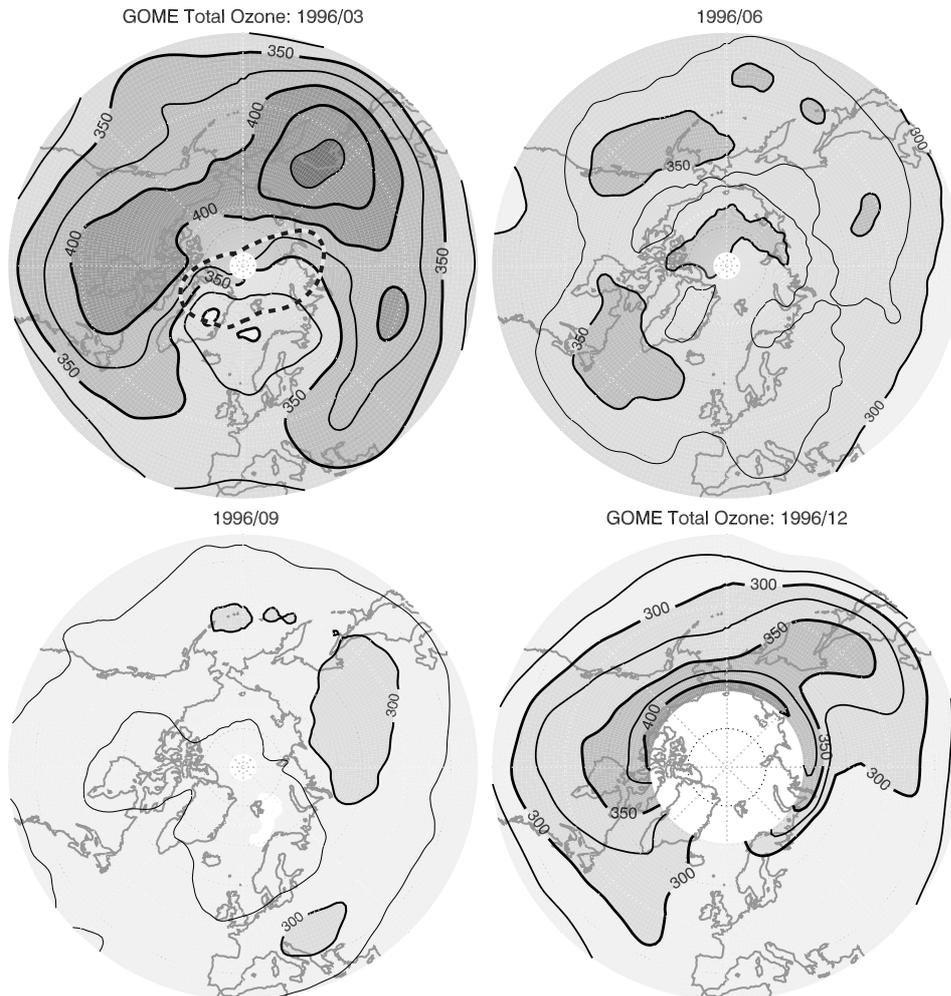


Abbildung 9.3: GOME-Gesamtozon [DU] der Nordhemisphäre für vier Jahreszeiten repräsentiert durch die Monate März, Juni, September und Dezember 1996. Der Abstand der Konturlinien beträgt 25 DU. Der monatsgemittelte polare Vortex ist für März als gestrichelte Linie eingezeichnet.

zum Beispiel das Aläuten-Tief über dem Pazifik und das Island-Tief über dem Nordatlantik. Die Hochdruckgebiete befinden sich dagegen über den Kontinenten. Die aus dieser Verteilung resultierende mit der Höhe aufsteigenden Phase einer quasi-stationären Rossby-Welle ist leicht westwärts geneigt. Deshalb befindet sich das Tiefdruckgebiet, welches über dem Meeresspiegel des Pazifik liegt, in der unteren Stratosphäre über der Ostkante des eurasischen Kontinents (Hood und Zaff, 1995). Deshalb ist das Ozon-

maximum bei etwa  $135^\circ\text{O}$  aus dem Aläuten-Tief entstanden und das zweite Maximum bei etwa  $80^\circ\text{W}$  aus dem Island-Tief. Allgemein kann man sagen, dass die Ozonmaxima dort auftreten, wo die geopotentielle Höhe in der unteren Stratosphäre (50–150hPa) ein Minimum hat.

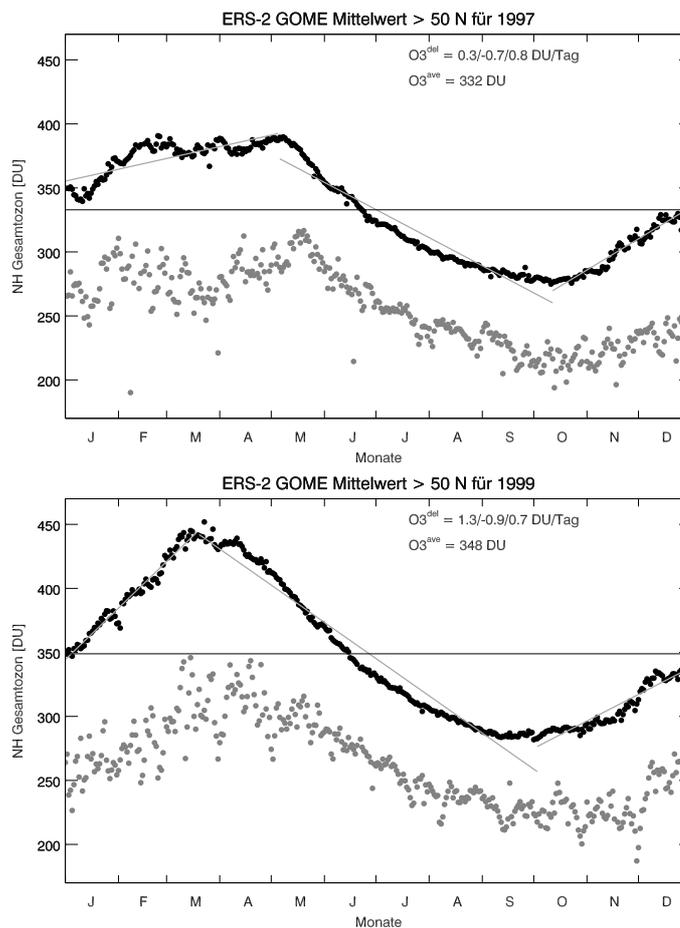


Abbildung 9.4: Zeitserie der Tagesmittelwerte des GOME-Gesamtozons für Breiten oberhalb  $50^\circ\text{N}$  (schwarze Kreise) und der Minimalwerte (graue Kreise) am Beispiel eines stratosphärisch kalten (1997) und warmen (1999) Jahres. Zusätzlich sind Jahresmittelwert  $\text{O}_3^{\text{ave}}$  und die maximalen Steigungen  $\text{O}_3^{\text{del}}$  [DU/Tag] eingetragen: 1. vom Beginn des Jahres bis zum Ozonmaximum im Frühjahr, 2. der Abfall bis zum Herbstminimum, sowie 3. der erneute Anstieg zum Ende des Jahres.

Abbildung 9.4 zeigt eine Zeitserie zonal gemittelter Ozonwerte oberhalb  $50^\circ$  in der Nordhemisphäre für zwei dynamisch und chemisch unterschiedliche Winter/Frühjahrs-Perioden. Während 1997 ein stratosphärisch kal-

tes Jahr war, gab es 1999 relativ hohe Temperaturen in der Stratosphäre. Dementsprechend gibt es große Unterschiede im Ozonverhalten zu Beginn des Jahres. Reichen die Ozonwerte 1997 nie über 400 DU, gibt es bis März 1999 einen starken Ozonanstieg auf etwa 450 DU. Aufgrund stärkerer diabatischer Bewegungen bei höheren Temperaturen sowie intensiverer Wellenbrechung und dem damit verbundenen Lufttransport nach Norden wird 1999 in nördlichen Breiten mehr Ozon angereichert. 1999 war der chemische Ozonverlust im polaren Vortex aufgrund niedrigerer PSC Bildungs-raten auch geringer. Der chemische Ozonverlust spielte 1997 eine größere Rolle und wirkte sich deshalb auch auf den täglichen Mittelwert aus. Der Jahresverlauf in der Ozonentwicklung ist 1997 und 1999 nahezu gleich. Im Frühjahr und Sommer wird die Ozonschicht zunehmend dünner, weil sich die atmosphärischen Zirkulationsmuster ändern und ozonreiche Luft nicht mehr nach Norden transportiert wird und dort absinken kann. Die Minima von weniger als 300 DU treten im Herbst zu gleichen Zeiten auf. Der darauffolgende Anstieg ist in beiden Jahren auch ähnlich (1997: 0,8 DU/Tag; 1998: 0,7 DU/Tag). Das Jahresmittel wird deshalb hauptsächlich von der Periode Februar bis April geprägt, wo sich die Anstiegsraten mit 0,3 DU/Tag (1997) und 1,3 DU/Tag (1999) stark unterscheiden. 1997 fällt das Jahresmittel mit 332 DU im Vergleich zu 1999 mit 348 DU mit 4,8 % deutlich niedriger aus.

Die äquivalente Breite, die in Abschnitt 5.2.3 eingeführt wurde, kann verwandt werden, um eine von interannualen Effekten wie Vortexposition und -größe unabhängige Darstellung der Ozonverteilung in der Nordhemisphäre zu gewinnen. In Abbildung 9.5 ist eine Umrechnung der geographischen Breite in äquivalenter Breite anhand der potentiellen Vorticity auf 475 K, die in etwa das Maximum der Ozonkonzentration markiert, für den GOME-Datensatz vorgenommen worden. Hierbei fallen Effekte wie die Verschmierung von Ozonminima im Vortex, wie sie bei zonalen Mittelwerten des Ozons auftreten, weg. Dargestellt ist das Gesamt Ozon für die Winter/Frühjahrs-Periode von November bis April als Funktion der äquivalenten Breite. Nördlich von etwa  $65^\circ$  kann man 1997 und 2000 deutlich niedrigere Werte sehen, als in 1998 und 1999.

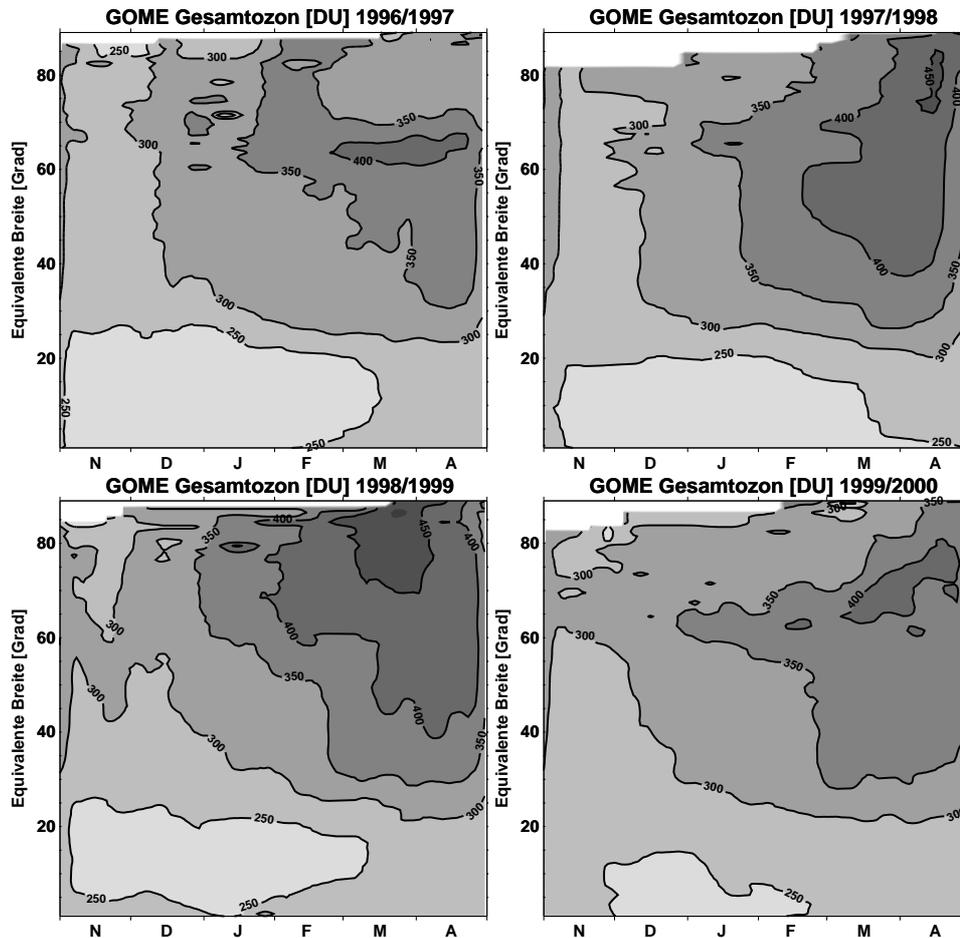


Abbildung 9.5: Zeitserien der GOME-Gesamtozonverteilung in der Nordhemisphäre [DU] als Funktion von Zeit und äquivalenter Breite für November bis April der Jahre 1996/1997 bis 1999/2000. Der Abstand der Konturlinien beträgt 50 DU.

## 9.2 Einfluss der Tropopausenhöhe auf die Ozonsäule

Die Gesamtozonmenge wird einerseits über aufsteigende Wellen durch troposphärische Prozesse bestimmt. Aber auch die Variation der Tropopausenhöhe ist ein wichtiger Faktor für die Ozonsäule an einem Ort (Hoinka et al., 1996; Steinbrecht et al., 1998). Eine Änderung der Tropopausenhöhe bewirkt allgemein eine Änderung der Ozonverteilung mit der Höhe und damit eine Änderung der Gesamtsäule. Bei hoher Tropopause ist die Ozonkonzentration von der Tropopause bis zum Maximum in etwa 22 km Höhe stark

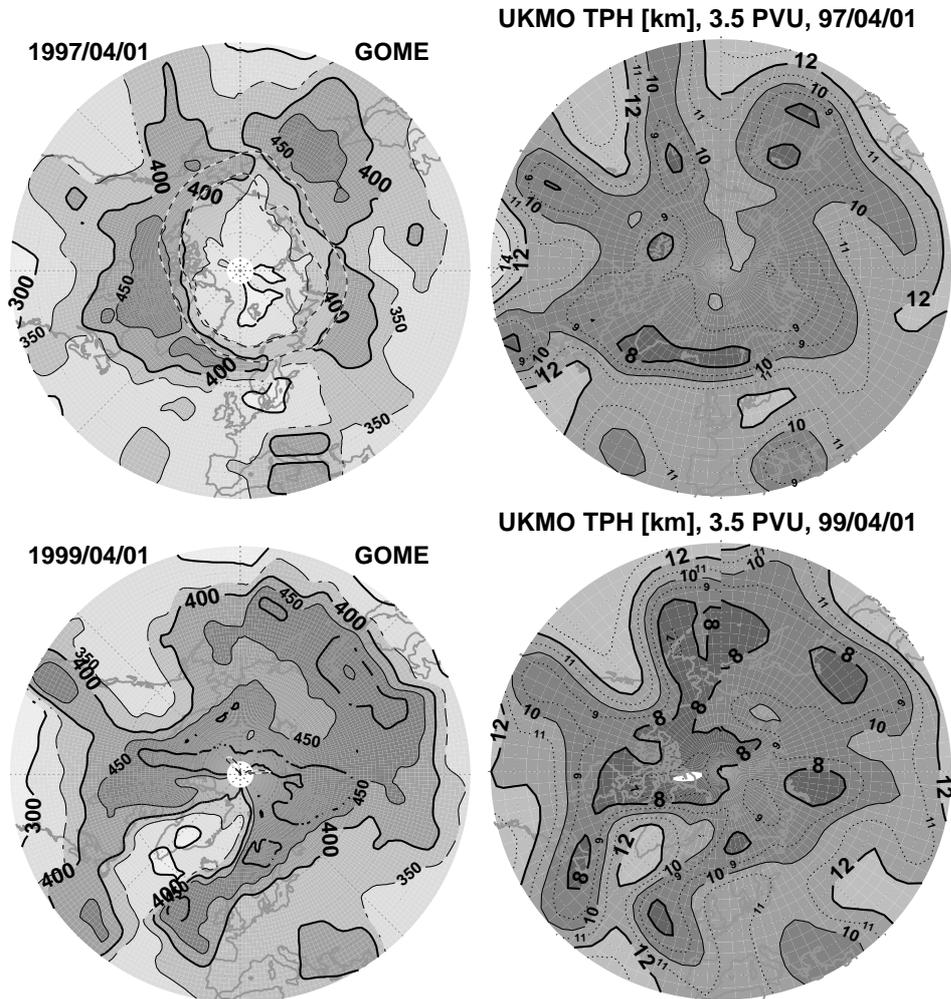


Abbildung 9.6: Vergleich von Gesamtozon [DU] (links) und dynamischer Tropopausenhöhe [km] (rechts) am Beispiel eines stratosphärisch kalten (1. April 1997, oben) und eines warmen Tages (1. April 1999, unten) im NH-Frühling. Die dynamische Tropopausenhöhe wurde aus UKMO-Daten als die Höhe bestimmt, in der die potentielle Vorticity einen Wert von 3,5 PVU annimmt.

reduziert (Zellner et al., 1999). Ein besonders eindruckvolles Phänomen in diesem Zusammenhang ist die Bildung von Ozonminilöchern, die eine kurzlebige und starke Reduktion der Gesamtozonmenge darstellen (siehe Abschnitt 9.3), die besonders auf der Winterhalbkugel in mittleren Breiten auftreten können (Eichmann et al., 1999a, 2000b).

In Abbildung 9.6 wird die Tropopausenhöhe [km], bestimmt aus den drei-

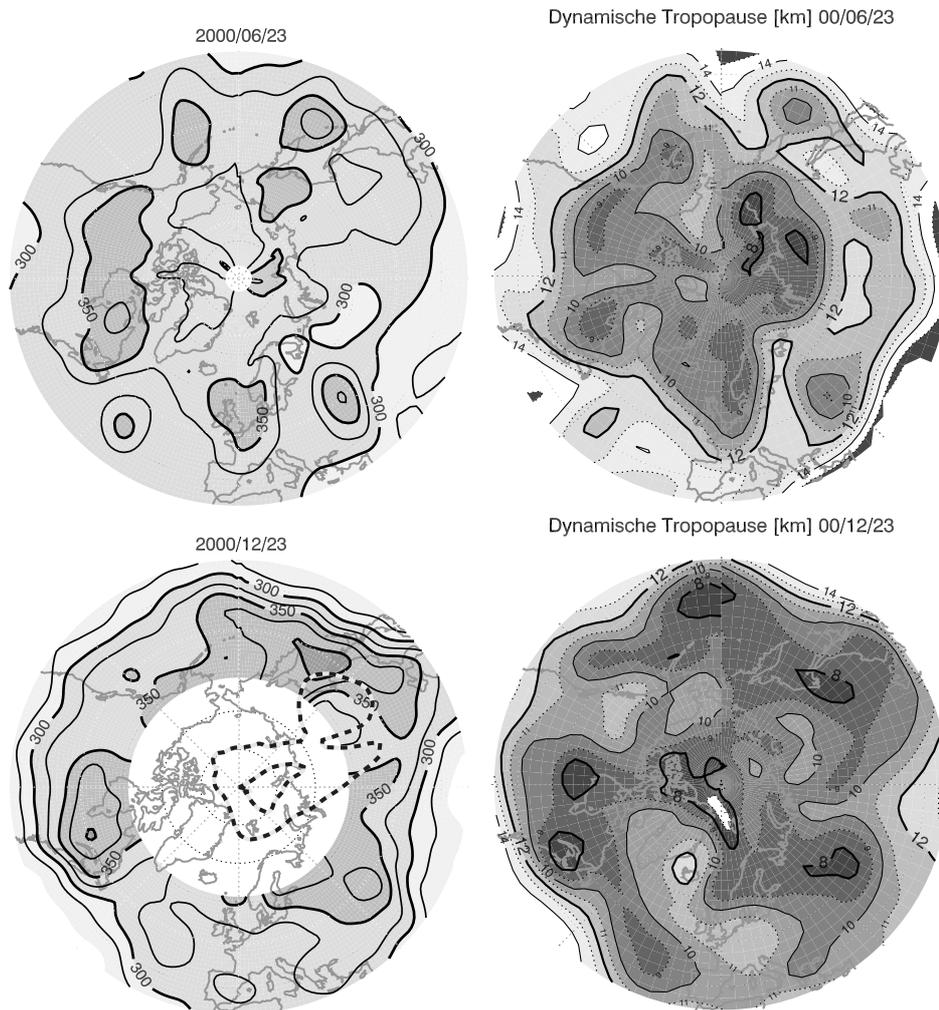


Abbildung 9.7: Vergleich der nordhemisphärischen Verteilungen von GOME-Gesamtozon (links) und dynamischer Tropopausenhöhe (rechts) für Sommer (23.6.2000, oben) und (23.12.2000, unten). Der Abstand der Konturlinien beträgt für Gesamtozon 25 DU und Tropopausenhöhe 1 km.

dimensionalen *PV*-Feldern von UKMO, für den 1. April 1997 und 1999 der GOME-Gesamtozonverteilung [DU] in der Nordhemisphäre gegenübergestellt. Anhand dieser Bilder lassen sich mehrere Phänomene der Ozonverteilung in der Nordhemisphäre verdeutlichen. 1999 war ein stratosphärisch warmes Jahr mit großen Wellenbewegungen. Der Vortex ist bereits Anfang März zusammengebrochen.

Man erkennt eine gute Übereinstimmung in den Verteilungsmustern von

Tropopausenhöhe und Ozon. Maximale Ozonsäulen um 500 DU werden dort gefunden, wo die Tropopause unter 9 km liegt. Tropopausenhöhen von unter 8 km werden nordwestlich von Grönland gemessen. Über der Südspitze von Grönland hat sich ein Miniloch mit Ozonwerten unter 300 DU ausgebildet, das mit Tropopausenhöhen von über 12 km assoziiert ist. Auch für April 1997 kann solch eine Relation zwischen Tropopause und Ozon festgestellt werden.

Pro 1 km Tropopausenerhöhung gehen etwa 40–50 DU in der Säule verloren. Die Relation gilt nicht für das Vortexinnere, wo Ozonsäulen von unter 300 DU auftreten, während die Tropopause nicht über 10 km reicht. Zum Vergleich treten in einem gleichzeitig über Europa liegenden Ozonminiloch bei einer Tropopausenhöhe von 12 km ebenfalls Ozonwerte von unter 300 DU auf. Im Vortexinneren gelten also andere Bedingungen, es fehlen grob geschätzt dort etwa 70–120 DU Ozon. Diese Abschätzung deckt sich mit Ozonsondenmessungen von Knudsen (Knudsen et al., 1998b) und SAOZ-Messungen (Braathen, 2001). Der chemische Ozonverlust wird in Abschnitt 10.1 noch genauer untersucht.

Abbildung 9.7 zeigt die Zusammenhänge von Tropopause und Ozonsäule für Sommer und Winter des Jahres 2000. Es zeigt sich, dass die Tropopausenhöhe abhängig von der Jahreszeit ist. Im Sommer liegt die Tropopause in der Nordhemisphäre durchschnittlich etwa 1–2 km höher als im Winter (Mittel nördlich 40°: 9,5 km versus 10,6 km). Die Konsequenzen für das Gesamtozon sind aus den Abbildungen aber nicht eindeutig abzuleiten. Eine Korrelation von Tropopausenhöhe und Ozonsäule besteht jedoch auch im Sommer. Aber sehr hohe Tropopausen von 16–17 km, wie sie zum Beispiel über Südwestrussland (23.6.: rechter Bildrand) auftreten, führen nicht zu extrem niedrigen Ozonwerten von 250–300 DU. Dies ist im Winter anders, in dem Gebiet um 90°O führen Tropopausenhöhen von etwa 12–13 km zu Ozonwerten von unter 200 DU.

Die Kopplung von Dynamik und Ozon ist eine nähere Untersuchung wert, geht aber über den Rahmen der Arbeit hinaus. Untersuchungen von Weiss (2000) mit Hilfe von langjährigen Ozonsondenmessungen zeigen, dass mehr als die Hälfte der Ozonvariabilität in mittleren Breiten durch eine lineare Abhängigkeit von Ozonsäule und Tropopausenhöhe erklärt werden kann. Weitere Einflussfaktoren sind der chemische Ozonverlust, die Menge stratosphärischer Aerosole aus massiven Vulkanausbrüchen, sowie die Varia-

bilität der Sonne, repräsentiert zum Beispiel durch den solaren Fluss von Radiowellen im 10,7 cm Bereich.

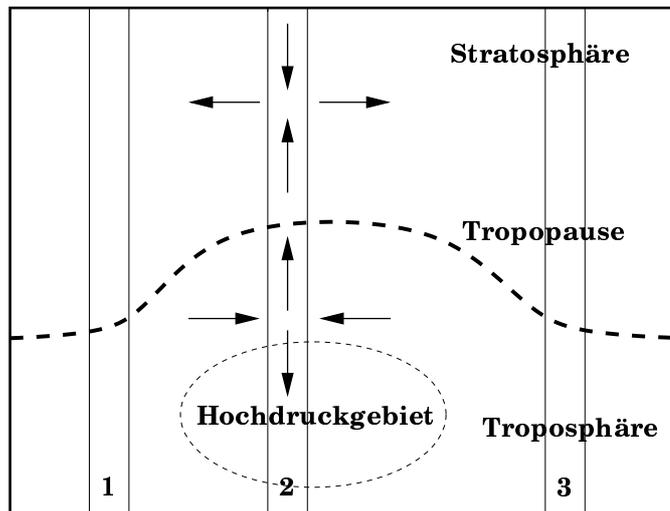


Abbildung 9.8: Schema der Luftmassenbewegungen und der Tropopause während der Evolution eines Ozonminilochs.

### 9.3 Ozonminilöcher als transiente Ozonänderungen

Ein interessanter und extremer Fall der Ozondynamik ist das sogenannte Ozonminiloch. Es stellt ein dynamisch kontrolliertes transientes Ereignis dar, bei dem Ozonloch-ähnliche Zustände in mittleren Breiten ausserhalb des Vortex auftreten kann. Ozonlöcher entstehen durch Kopplung troposphärischer Wetterphänomene und der Bewegungsformen stratosphärischer Spurengasgehalte (Eichmann et al., 1999a; Weber et al., 2001). Als Objekt zur Untersuchung mit GOME-Daten zeigen Ozonminilöcher die Möglichkeiten und Grenzen des FURM-Algorithmus auf, die sich aufgrund der begrenzten Höhenauflösung und dem Einfluss von Klimatologie und deren Varianz auf die Optimal Estimation Methode ergeben (Bramstedt, 2001).

Die Verbindung von Gesamtozon und troposphärischen Drucksystemen ist seit langem bekannt und von Dobson bereits in den 20er Jahren dokumen-

tiert worden (Dobson et al., 1929; Dobson, 1968). Untersuchungen der Korrelationen zeigen, dass troposphärische Zyklone (Tiefdruckgebiete) beziehungsweise Antizyklone (Hochdruckgebiete) mit hohem beziehungsweise niedrigem Gesamtozon verbunden sind (siehe Abbildungen 9.13 (rechts) und 9.9). Der Hauptteil der kurzzeitigen Varianz in der Ozonsäule lässt sich auf vertikale Bewegungen, die durch die Entwicklung von Trögen und Rücken in der Druckverteilung der unteren Stratosphäre bedingt sind, zurückführen. Dabei besteht eine Korrelation sowohl zwischen Ozon und potentieller Vorticity der Tropopausenregion, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, als auch zwischen Ozon und Temperaturen in der Tropopausenregion und in der Stratosphäre (Petzold et al., 1994; Hood und McCormack, 1997). Minilöcher werden hauptsächlich in mittleren Breiten und den Polarregionen in der Winter/Frühjahrsperiode beobachtet (McCormack und Hood, 1997; James, 1998b,a).

Ozonminilöcher sind eine reversible Reduktion der Ozongesamtsäule, die einige 10DU bis über 100DU ausmachen kann. Ozonminilöcher (OML) sind dabei mit blockierenden Hochdruckgebieten in Bodennähe assoziiert (Farman et al., 1994). Sie wurden zuerst in der Südhemisphäre in TOMS-Daten des Gesamtozons entdeckt (Newman et al., 1988; McKenna et al., 1989). Die Minilöcher resultieren aus einer Kombination von horizontaler Advektion troposphärischer Luftmassen und vertikalen Luftbewegungen stratosphärischer Luftmassen. Bei der Entstehung von OMLs wird subtropische Luft nach Nordosten in das Einflussgebiet eines Antizyklons advektiert. Dies führt zur Änderung der Tropopausenhöhe, weil die troposphärische schwerere Luft die stratosphärische leichte Luft in der Höhe verdrängt. Die von den Tropen oder Subtropen ausgelenkten troposphärischen Luftmassen haben dabei eine deutlich niedrigere Ozonkonzentration als stratosphärische auf gleicher geopotentieller Höhe (Grant et al., 2000). Die Ozonkonzentration hat in den Tropen bis 30°N und Süd im Bereich um 10km Höhe ihr Minimum.

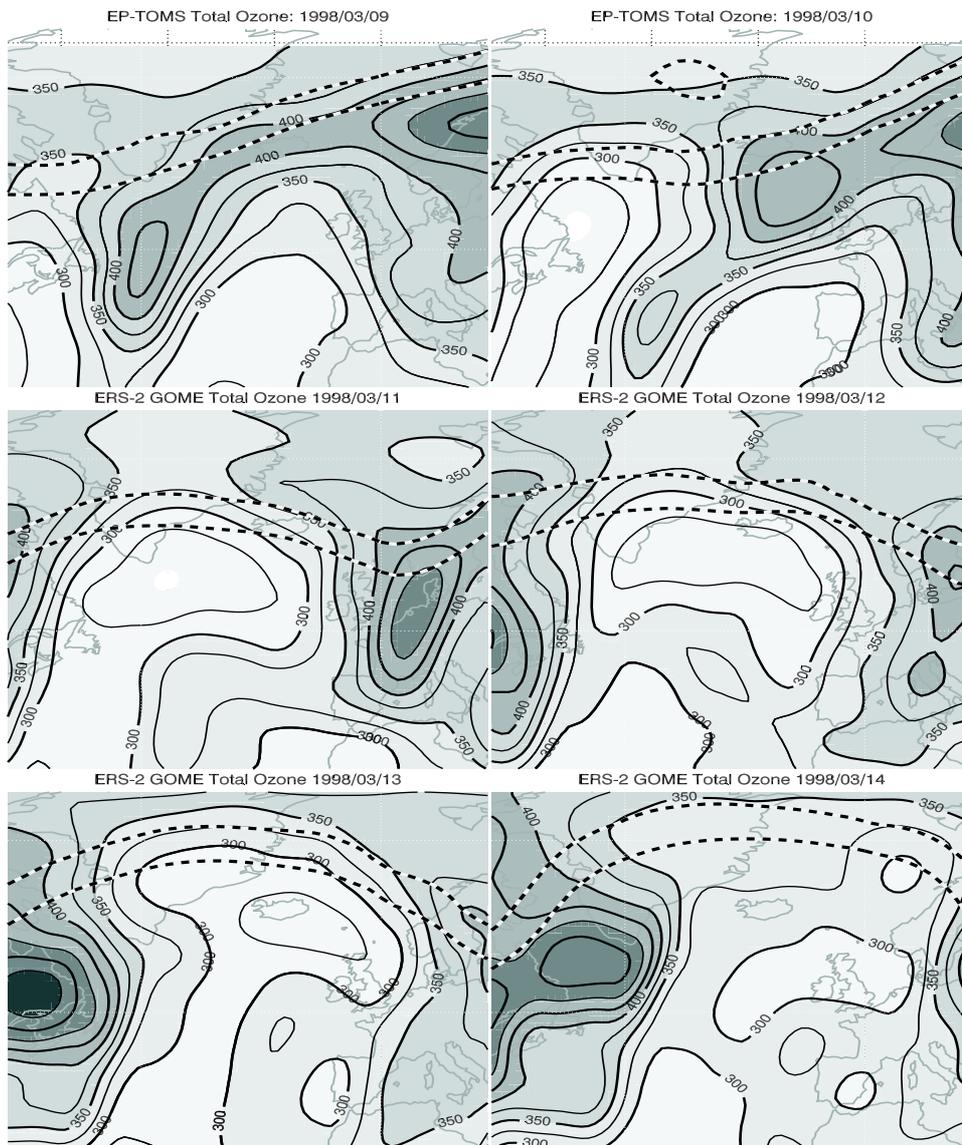


Abbildung 9.9: Tageskarten des GOME-Gesamtozons [DU] vom 9. bis 14. März 1998 für den nordatlantischen Sektor. Die Abstände der Isolinien betragen 25 DU. Die Daten des 9. und 10. März stammen aus Messungen des TOMS-Instruments, da an diesen Tagen größere Messlücken in den GOME-Messungen existierten.

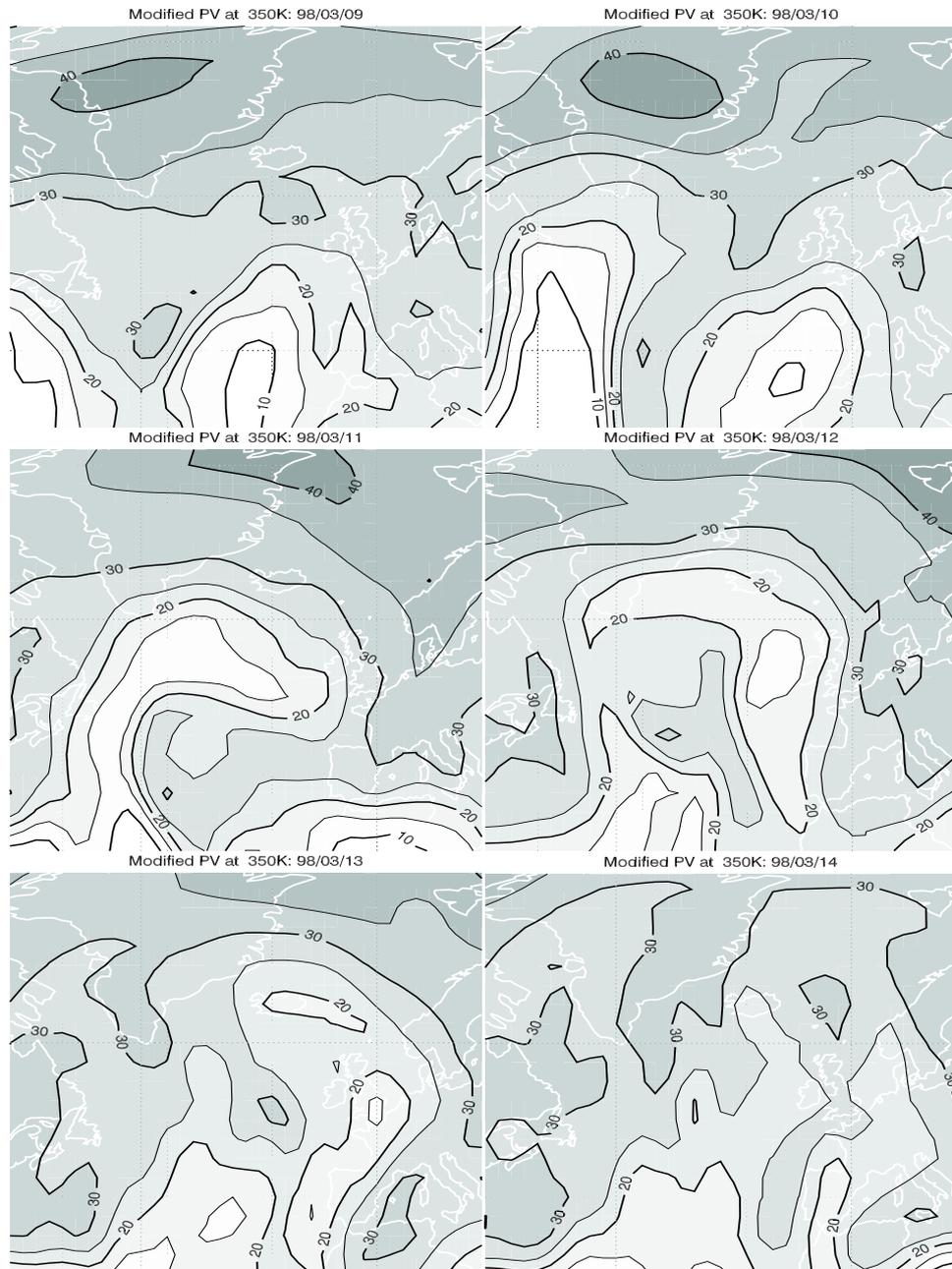


Abbildung 9.10: Tageskarten der modifizierten potentiellen Vorticity [PVU] auf 350K für den nordatlantischen Sektor im Zeitabschnitt vom 9. bis 14. März 1998. Der Abstand der Isolinien beträgt 5PVU.

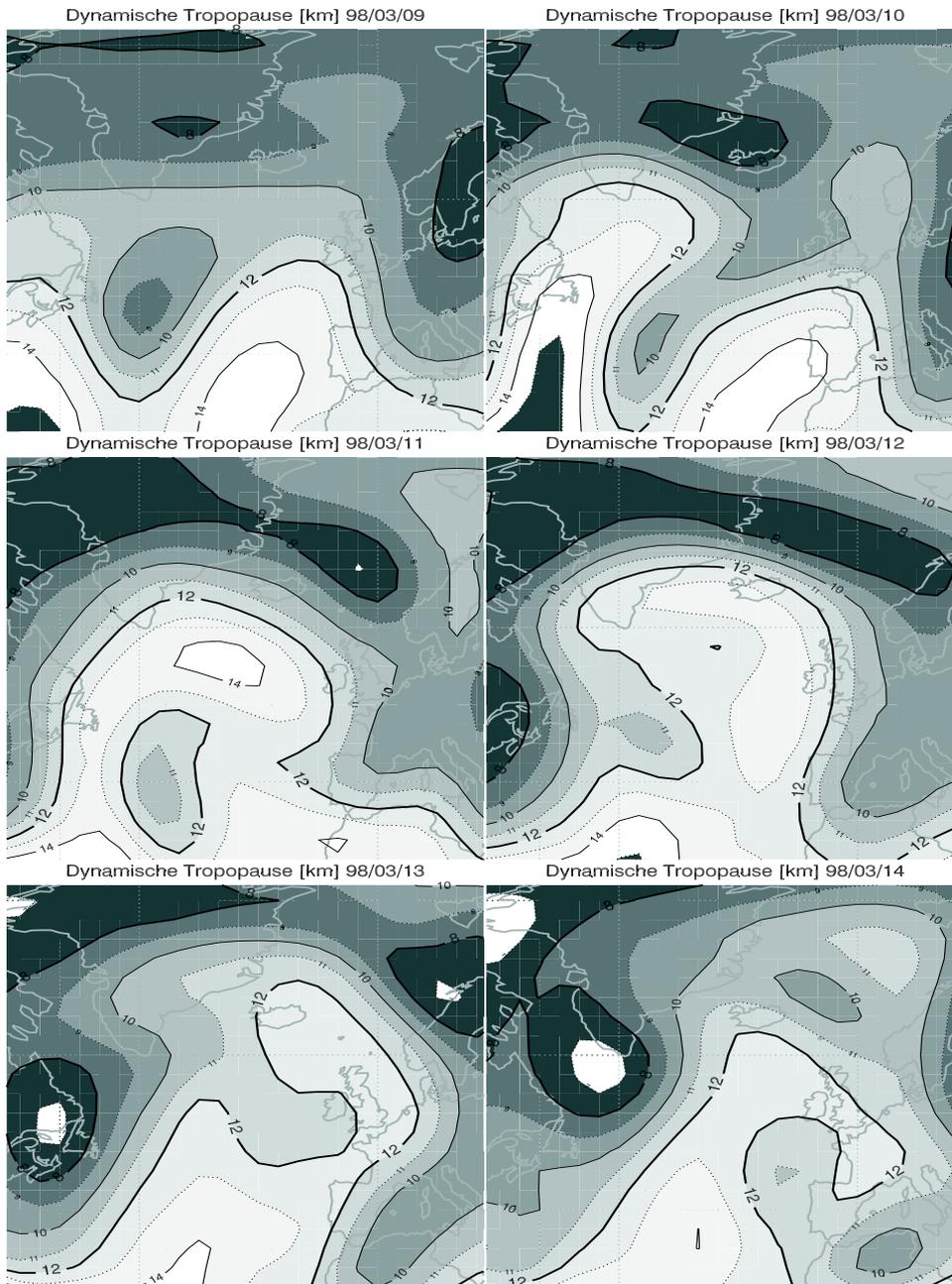


Abbildung 9.11: Sequenz der dynamischen Tropopausenhöhe [km] im Zeitabschnitt vom 9. bis 14. März 1998. Der Abstand der Isolinien beträgt 1 km.

Allgemein haben Luftmassen in den verschiedenen Atmosphärenschichten unterschiedliche Bewegungsrichtungen. Wenn stratosphärische Luftmassen eine meridionale Flussrichtung haben und sie auf den Rücken einer erhöhten Tropopause treffen, so werden sie vertikal angehoben. Dies führt zur Änderung der Ozonverteilung, da ozonreiche Luft aus der stratosphärischen Säule als Folge der Massenerhaltung divergiert (Salby und Callaghan, 1993). Das Volumenmischungsverhältnis ändert sich bei vertikaler, adiabatischer Auslenkung nicht. Durch das Anheben gelangt Luft niedriger Ozon-VMR in den Bereich des Ozonmaximums, so dass auch die stratosphärische Teilsäule im Ozon reduziert wird. Durch das Anheben und die Expansion wird zusätzlich die Temperatur der Luft herabgesetzt. Die Bewegungen der Luftmassen sind in Abbildung 9.8 schematisch dargestellt. Tritt dieses Phänomen in der Nähe des Vortexrandes auf, so können extrem niedrige Gesamtsäulen gemessen werden, weil die Vortexluft bereits niedrige Ozonkonzentrationen enthalten kann (Petzold et al., 1994).

OML sind aus zwei Gründen wichtig für das Studium polaren Ozons: (i) Sie sind am meridionalen Transport in der unteren Stratosphäre beteiligt. OML können dabei starke irreversible Deformationen der zirkumpolaren Zirkulation induzieren. (ii) Sie spielen eine wichtige Rolle für die chemische Balance der Ozonschicht. Das starke adiabatische Kühlen durch Aufstieg von stratosphärischen Luftmassen an der erhöhten Tropopause kann die Bildung von PSCs begünstigen oder sogar hervorrufen (Rood et al., 1992; Grewe und Dameris, 1997).

Die Sachverhalte sollen an einem Beispiel verdeutlicht werden. In der Zeit um den 11. März 1998 bildete sich über dem Nordatlantik südlich von Grönland ein starkes Ozonminiloch aus. Das Ozonminiloch kann sowohl in den Gesamtozonkarten der Region, als auch in den Karten der meteorologischen Parameter identifiziert werden. Im Folgenden werden wir den Zeitraum vom 8. bis 15. März 1998 näher betrachten. In Abbildung 9.9 ist eine Sequenz der Gesamtozonwerte für den nordatlantischen Sektor für die oben genannte Periode gezeigt. Man kann das Vordringen von Luft mit geringem Gesamtozon aus dem Süden in Richtung Nordatlantik und die Rechtsablenkung in hohen Breiten nach Europa hin sehen. Am 11. März wurden die geringsten Ozonsäulen mit weniger als 250DU an der Südspitze Grönlands gemessen, das sind mehr als 100DU weniger als es dem Monatsmittelwert an dieser Stelle entspricht. Desweiteren erkennt man die Auswirkung des

Hochdruckkeils auf den polaren Vortex in der Stratosphäre. Mit Vordringen der subtropischen Luft weicht der Vortex aus und es entsteht eine Delle an der Vortexgrenze. Die stratosphärischen Luftmassen, die von West nach Ost entlang der *PV*-Linien laufen, werden durch das adiabatische Aufsteigen nach links in Richtung Nordpol abgelenkt. Am Ende der Periode löst sich das Ozonminiloch wieder auf und es verbleibt ein Gebiet niedrigen Gesamt Ozons, das langsam Richtung Europa zieht.

Vernachlässigt man die chemischen Beiträge auf den beobachteten synoptischen Zeitskalen aufgrund der Zeitskalen eines OML-Ereignisses, so ist das Volumenmischungsverhältnis ebenso eine Erhaltungsgröße wie die potentielle Vorticity (James et al., 1997). Die Lebensdauer von »ungeradem« Sauerstoff (*odd oxygen*) in der unteren Stratosphäre liegt zwischen 50 und 100 Tagen (Hood und McCormack, 1997). Deshalb kann man mit Hilfe der *PV* in der Tropopausenregion die Ozonminilochbildung nachvollziehen. Richtung Äquator nimmt die Stärke der *PV* zu Null hin ab und kehrt das Vorzeichen auf der Südhalbkugel um. Zu den Polen nimmt die *PV* insbesondere im Winter aufgrund des Polarwirbels stark zu. Stärkere Abweichungen vom Normalzustand sind so in den *PV*-Karten zu sehen.

Zur genauen Analyse des räumlichen und zeitlichen Verhaltens sind meteorologische Datensätze hilfreich, wie sie von ECMWF und UKMO zur Verfügung gestellt werden. Die Sequenz von Entstehung und Verfall des Ozonminilochs wird beispielsweise durch die modifizierte potentielle Vorticity auf der 350 K Isentrope (circa 12 km) sehr gut beschrieben, wie in Abbildung 9.10 dargestellt. Die Korrelation zwischen *PV* und Totalozon ist sehr groß. Die 350 K *PV* kann als Maß für die Höhe der Tropopause verwendet werden, troposphärische Luftmassen aus dem Süden mit einer hohen Tropopause haben eine niedrige *PV*, hier niedriger als 20–25 PVU, und umgekehrt. Man erkennt in der Sequenz das Vordringen subtropischer Luftmassen Richtung Nordatlantik und die Wellenbrechung der Zunge niedriger *PV* im Laufe der Zeit. Zugleich bewegt sich das Gebiet von Ost nach West und erreicht am Ende der Periode am 15. März den europäischen Kontinent.

Die *PV* Felder lassen sich, wie in Abschnitt 5.1.4 beschrieben, umrechnen in Tropopausenhöhen. Dies ist in Abbildung 9.11 dargestellt. Es besteht wie bereits angesprochen ein hoher Grad der Korrelation zwischen Tropopausenhöhe und Ozonsäule. Ähnlich wie in der Sequenz von *PV*-Werten

auf 350 K sieht man in der Tropopausenverteilung die Wellenbrechung über dem Nordatlantik.

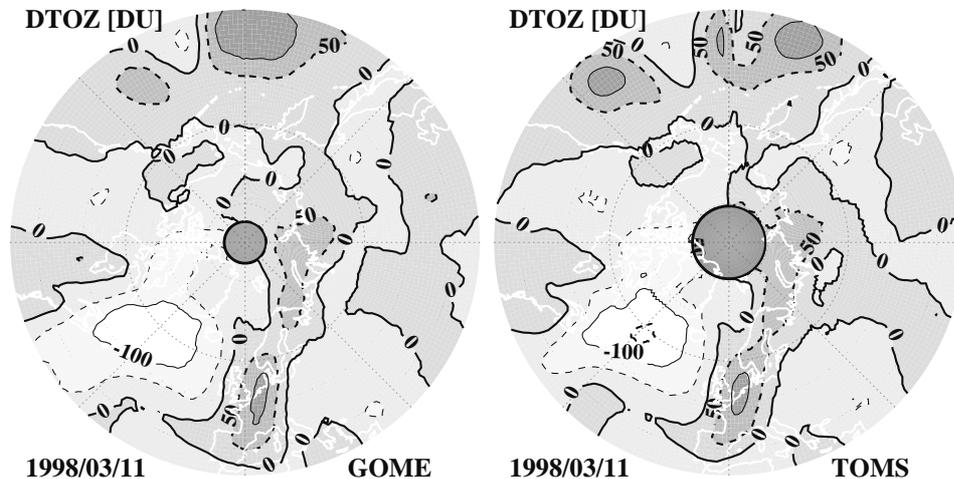


Abbildung 9.12: Abweichung [DU] des Tagesozons vom Monatsmittelwert März. Vergleich der Ergebnisse von GOME (links) und TOMS (rechts) für das Miniloch-Ereignis vom 11. März 1998.

In Abbildung 9.12 sind am Beispiel von GOME- und TOMS-Messungen die Abweichungen des Gesamt ozons vom 11. März 1998 vom Monatsmittel im März dargestellt. Zwischen beiden Messgeräten kann eine gute Übereinstimmung festgestellt werden. Bei GOME wird die Tiefe des Ozonminilochs jedoch etwas unterschätzt. Dies liegt zum einen an der geringeren räumlichen Auflösung, zum anderen an den unterschiedlichen Art der Auswertung bei GOME. Aufgrund einer auf die aktuelle Situation angepassten Auswertung kann TOMS extreme Abweichungen im Ozonprofil wie diesen genauer bestimmen. Bei TOMS wird das klimatologische Ozonprofil in Abhängigkeit von der abgeschätzten Ozonmenge für die Auswertung ausgewählt. Dies ist bei GOME nicht gegeben, wird aber in einer zukünftigen operationellen Auswertung berücksichtigt.

Über dem Nordatlantik hat sich eine sehr starke negative Abweichung des Gesamt ozons ausgebildet, die mehr als 100 DU ausmacht. Östlich davon treten über Europa dafür deutlich höhere Ozonwerte als üblich auf, was eine Folge der meridionalen Verschiebungen der Luftmassen ist.

Am Beispiel des 11. März lassen sich die Verhältnisse in den verschiedenen Atmosphärenschichten verdeutlichen. In Abbildung 9.13 (links) ist die

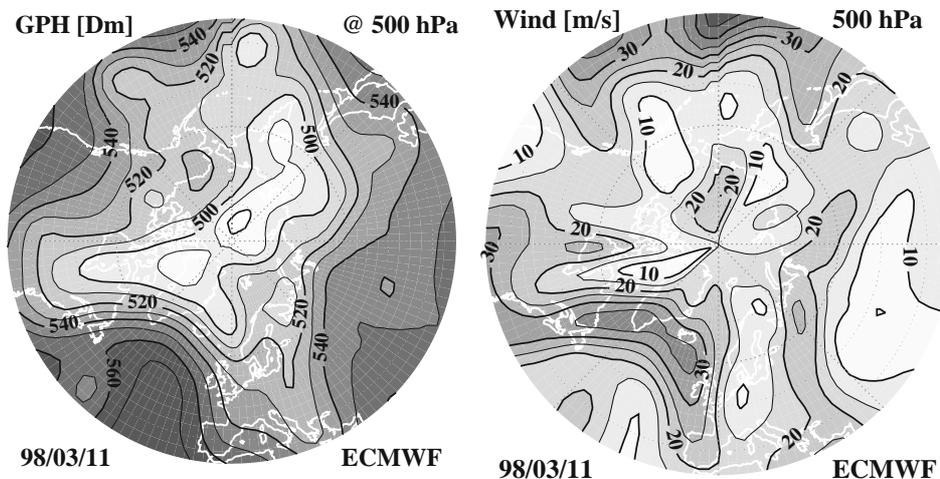


Abbildung 9.13: Geopotentielle Höhe [Dm = km/100] (links) und absolute horizontale Windgeschwindigkeit [ $\text{m s}^{-2}$ ] (rechts) in der Troposphäre auf 500 hPa für den 11. März 1998.

geopotentielle Höhe der freien Troposphäre bei 500 hPa (etwa 5,5 km) dargestellt. Hohe Werte werden generell in den Extratropen gefunden, wo eine überdurchschnittlich grosse geopotentielle Höhe mit Hochdruckgebieten assoziiert ist<sup>1</sup>. Die Ausdehnung des Hochdruckrückens in Richtung Pol führt zu einem starken Zufluß subtropischer Luft an der westlichen Flanke<sup>2</sup>. Dies ist in Abbildung 9.13 (rechts) zu sehen. Die Luft bewegt sich hier entlang der Isolinien der geopotentiellen Höhe. Am nördlichen Rand des Hochdruckrückens treten hohe Windgeschwindigkeiten auf, die zwischen Neufundland und Grönland mit über  $35 \text{ m s}^{-1}$  ( $126 \text{ km h}^{-1}$ ) am stärksten sind.

Das Vordringen subtropischer Luft hat Konsequenzen für die Temperaturen in Troposphäre und unterer Stratosphäre, wie in Abbildung 9.14 für den 11. März 1998 dargestellt. Sowohl auf der 500 hPa als auch auf der 300 hPa (circa 9 km) Isobare erkennt man das Vordringen warmer Luftmassen aus dem Süden als Auslöser des Minilochs. In Tropopausennähe im Hochdruckkeil bei 200 hPa (circa 12 km) dreht sich die Situation um und

1 Die Darstellung der geopotentiellen Höhe auf einer isobaren Fläche zeigt, in welcher Höhe ein bestimmtes Druckniveau erreicht wird. Hohe Werte implizieren Luftmassen mit hohen Temperaturen unterhalb des Niveaus aufgrund der hypsometrischen Gleichung 5.5.

2 Luft bewegt sich um Hochdruckgebiete antizyklonisch, das heißt im Uhrzeigersinn auf der Nordhemisphäre.

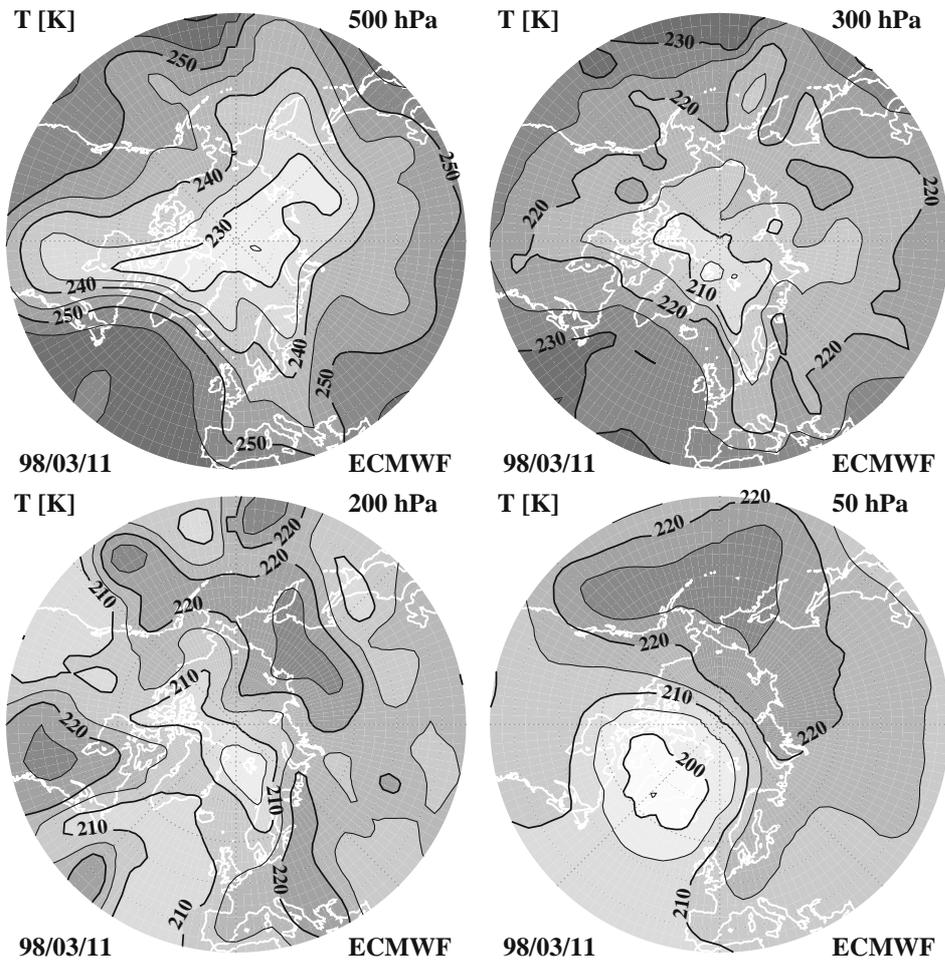


Abbildung 9.14: ECMWF Temperaturkarten [K] der Nordhemisphäre für die mittlere Troposphäre und die untere Stratosphäre auf den Isobaren 500, 300, 200 und 50 hPa (von links oben nach rechts unten).

wir finden ein Gebiet im Nordatlantik mit deutlich niedrigeren Temperaturen (mehr als 10K) als in der Umgebung. In Hochdruckgebieten wird die Luft durch Aufsteigen adiabatisch abgekühlt. Man findet also eine kalte, hohe Tropopause im Zentrum des Minilochs. Die Auswirkungen der troposphärischen Entwicklung auf die untere Stratosphäre ist durch die 50hPa Temperaturverteilung dargestellt. Über der Südspitze Grönlands treten sehr niedrige Temperaturen unter 195 K als Folge des Aufstiegs der Luftmassen innerhalb des Vortex und der Ablenkung nach Norden auf. Die Vortexgrenz-

region auf 475 K befindet sich zu diesem Zeitpunkt über Grönland, Island und der Nordsee (siehe auch Abbildung 9.9).

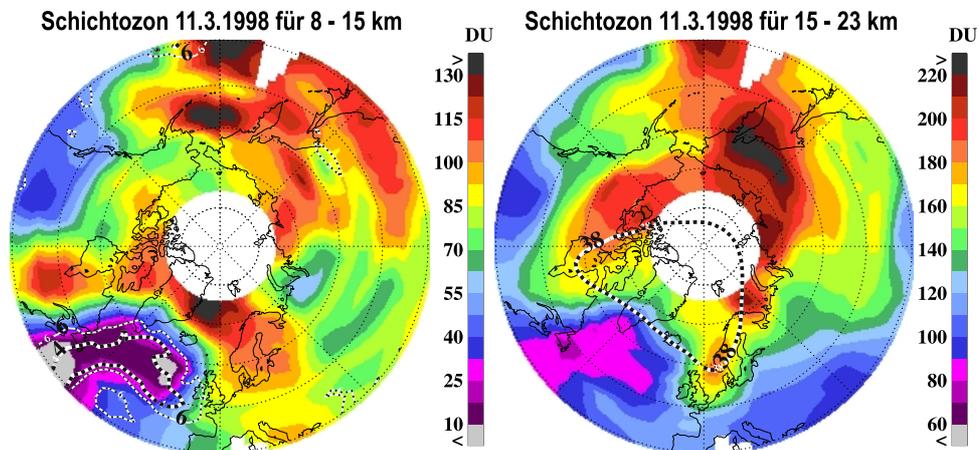


Abbildung 9.15: FURM Schichtozon [DU] vom 11. März 1998 für die Höhen 8–15 km (links) und 15–23 km (rechts). Der Bereich der troposphärischen Übergangsschicht liegt zwischen 10 und 130 DU, die der unteren Stratosphäre zwischen 60 und 220 DU. Zur Darstellung troposphärischer Luftmassen ist die potentielle Vorticity von 4 und 6 PVU auf der 350 K Isentrope in die 8–15 km Karte eingezeichnet worden. Die Vortexrandregion auf 475 K in der 15–23 km Karte wird durch die 38 PVU Isolinie dargestellt.

Mit Hilfe von FURM kann nun das dreidimensionale Ozonfeld analysiert werden, soweit es die räumliche und zeitliche Auflösung von GOME/FURM zulässt. Aufgrund der großen horizontalen (960 km) und vertikalen (etwa 7 km) Ausdehnung können durch Verschmierungseffekte feinskalige Phänomene nicht vollständig aufgelöst werden. Deshalb kann Ozon in verschiedenen Schichten zusammengefasst werden, welche die verschiedenen atmosphärischen Bereiche abdecken. In Abbildung 9.15 ist der Ozongehalt zweier Schichten, der Grenzregion der Tropopause von 8–15 km (links) und der unteren Stratosphäre von 15–23 km, wo sich das Maximum der Ozonkonzentration befindet (rechts), dargestellt. Das Vordringen subtropischer Luft nach Norden und die daraus folgende Tropopausenerhöhung sind in der linken Abbildung durch die potentielle Vorticity auf der 350 K Isentropen (grau-schwarz gestreifte Linie) beschrieben. Luftmassen aus der Troposphäre haben dabei durchweg geringere Ozonkonzentrationen im Vergleich zu Stratosphärischen. In der Stratosphäre (rechts) ist ebenfalls eine

Reduktion des Schichtozons durch adiabatischen Aufstieg der Luft und einer damit verbundenen Divergenz aus der Luftsäule zu finden. Die Luft sinkt hinter dem Ozonminiloch wieder ab und es kommt zu einer Erhöhung des Schichtozons im Nordseeraum.

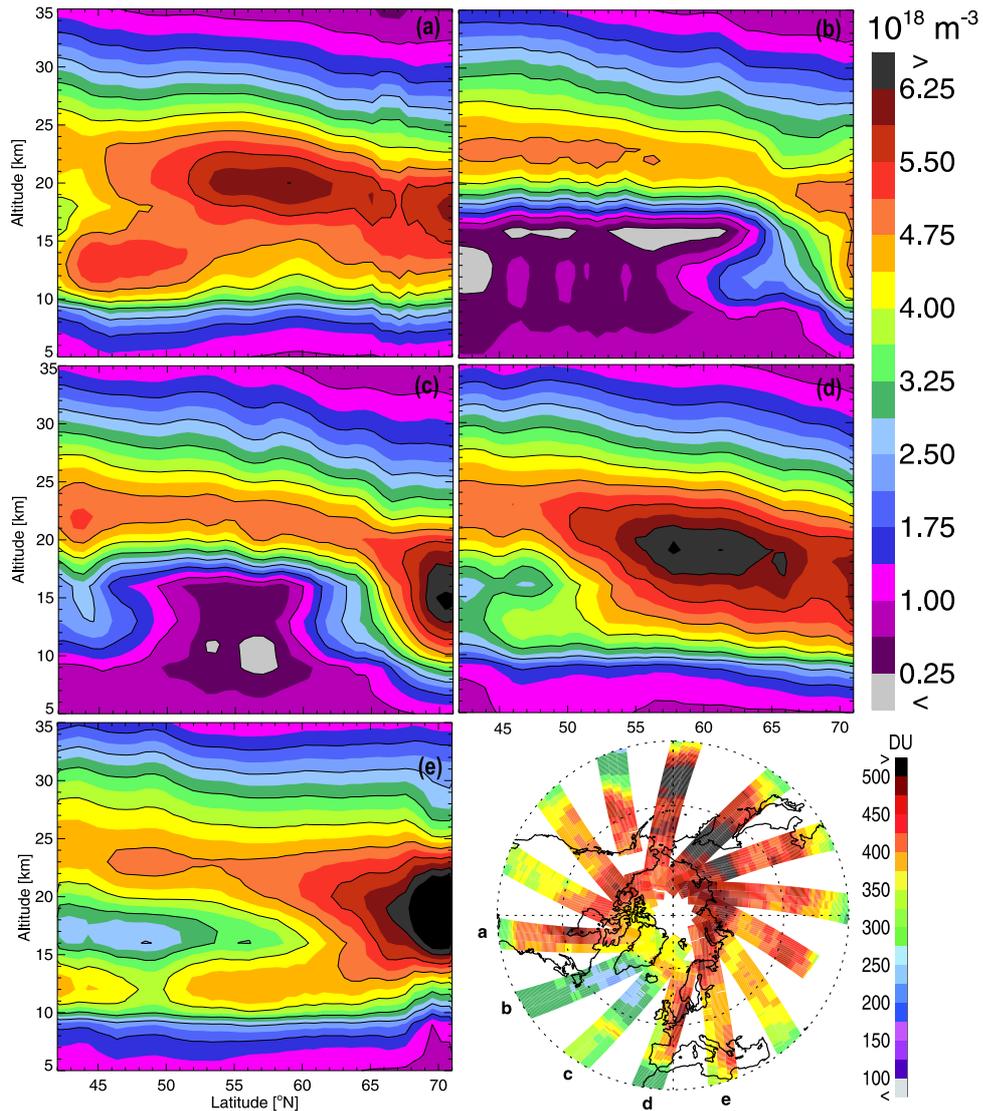


Abbildung 9.16: Höhen-Breitengradschnitte der Ozonkonzentration [ $10^{18} \text{ m}^{-3}$ ] entlang der GOME-Orbits im nordatlantischen Bereich vom 11. März 1998. Oben: Orbits (a) und (b). Mitte: Orbits (c) und (d). Unten: Orbit (e) und GOME-Gesamtozon [DU].

Die vertikale Struktur des Ozonminilochs läßt sich aus den GOME Messungen in Abbildung 9.16 erklären. Für jedes ausgewertete GOME/FURM-Pixel wird die Höhenverteilung in Teilchenzahldichte als Funktion des Breitengrads dargestellt. Die Orbits a, d und e zeigen den allgemeinen Zustand der Atmosphäre in mittleren Breiten im Frühjahr. Sehr hohe Ozonkonzentrationen ( $>6 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$ ) um die 20 km sind hier normal. Die Tropopause liegt niedrig, wie an hohen Ozongradienten um 10 km zu erkennen ist, und sinkt nach Norden hin leicht ab. Das Ozonminiloch, das in den Orbits b und c zu beobachten ist, kann deutlich unterschieden werden von den »normalen« atmosphärischen Bedingungen. Die Tropopausenerhöhung ist ebenfalls in den vertikalen Ozonverteilungen auszumachen. Troposphärische Luftmassen mit niedrigen Ozonmengen, die bis über 15 km reichen, sind nach Norden vorgedrungen. Die Ausdünnung des stratosphärischen Ozons über der angehobenen Tropopause ist ebenfalls zu sehen, die Teilchenzahldichten übersteigen hier  $5 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$  nicht.

Ein interessanter Aspekt ist der Einfluss subtropischer Luft in die Vortexgrenzregion bei etwa  $63^\circ \text{N}$  (Orbits b und c). Dies ist die Ursache für das Anheben der Luftmassen im Vortex, die Deformation des Vortex und die adiabatische Abkühlung über Grönland. Gleichzeitig ist eine Zunge relativ hoher Ozongehalte zu sehen, die aus dem Vortex stammt (Orbit b). Hierbei könnte es sich um das irreversible Abstreifen von Luft aus dem Vortexrandbereich handeln, die dann in mittlere Breiten fließt.

## 9.4 Trends im Gesamtozon

Ozon beeinflusst die Strahlungsbilanz des Systems Erde-Atmosphäre durch Absorption solarer Strahlung im kurzwelligen UV-B und Erdstrahlung in der  $9,6\mu\text{m}$ -Region. Änderungen im Ozonvertikalprofils in der unteren Stratosphäre und der oberen Troposphäre sind deshalb für die allgemeine Strahlungsbilanz der Atmosphäre wichtig (de F. Forster und Shine, 1997). In der unteren und oberen Stratosphäre wurde in den letzten Jahrzehnten Ozon durch die Zunahme der reaktiven Chlor- und Bromverbindungen abgebaut (Chipperfield und Jones, 1999), während es zu einer Zunahme des Ozons in der oberen Troposphäre in mittleren nördlichen Breiten kam (World Meteorological Organization, 1995).

In der unteren Stratosphäre gab es während der letzten drei Dekaden einen negativen Temperaturtrend von etwa  $0,4\text{ K/Dekade}$  auf globaler Basis. Das beobachtete Absinken stratosphärischer Temperaturen kann dem verminderten Heizen durch Ozonverluste zugeordnet werden (Amanatidis, 1997). Für den stratosphärischen Ozonverlust bewirkt der Beitrag der solaren Strahlung eine Temperaturerhöhung des Systems Erdboden-Troposphäre, während der Beitrag der infraroten Strahlung in umgekehrter Richtung wirkt. Temperaturänderungen der unteren Stratosphäre verkörpern ein wichtiges Bindeglied zwischen Klimaänderung und Ozonabbau, weil die Bildung von PSCs stark von der Temperatur abhängig ist.

In mittleren und hohen Breiten der Nord- und Südhemisphäre gibt es einen negativen Ozontrend, wie boden- und satellitengestützte Beobachtungen zeigen (Hood et al., 1999; World Meteorological Organization (WMO), 1999). Gerade in der unteren Stratosphäre in Höhen unterhalb von 25 km werden die höchsten Ozonverluste mit  $-6,5 \pm 1,9\%/Dekade$  im Februar und März gemessen (McPeters und Labow, 1996), was teilweise auf heterogene chemische Prozesse zurückzuführen ist. Modelle geben den Trend in nördlichen, mittleren Breiten im Winter nicht korrekt wieder und unterschätzen den Verlust (World Meteorological Organization, 1995; Solomon et al., 1998). Es gibt auch eine Korrelation zwischen Temperatur und geopotentieller Höhe mit Ozon (siehe Abschnitt 5.2.2). Dieser dynamische Beitrag zum Ozontrend kann in seiner Größe die Diskrepanzen zwischen Messungen und Modell erklären (Hood und McCormack, 1997).

In Abbildung 9.17 ist der Langzeitverlauf seit Ende der 70er auf Basis von

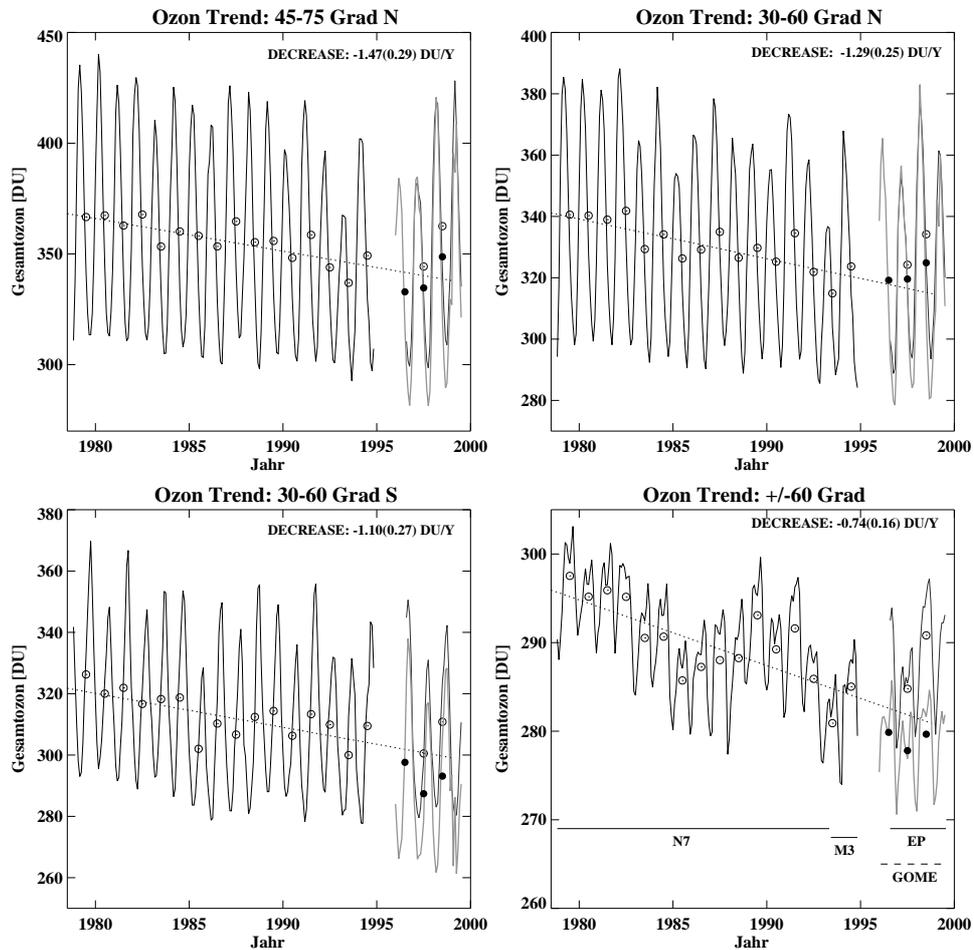


Abbildung 9.17: Ozontrends [DU] für unterschiedliche Breitengradzonen für den Zeitraum zwischen 1979 und 2000. Verwendet wurden Daten der verschiedenen TOMS Instrumente, die auf *NIMBUS-7* und *METEO-3* stationiert waren und gegenwärtig auf *Earth Probe* im Einsatz ist, sowie Messungen von GOME.

TOMS- und GOME-Daten für verschiedene Breitengradzonen gezeigt. Die Mittelwerte [DU] der Breitengradzonen von  $45$  bis  $75^\circ\text{N}$ ,  $30$  bis  $60^\circ\text{N}$ ,  $30$  bis  $60^\circ\text{S}$  sowie für  $\pm 60^\circ$  sind von oben links nach unten rechts als Funktion der Jahre von 1979 bis 2000 dargestellt.

Die TOMS-Monatsmittelwerte in den jeweiligen Zonen werden durch die schwarze durchgezogene Linie dargestellt, die offenen Kreise sind Jahresmittelwerte des TOMS-Ozons. Die graue Linie sowie die schwarzen, gefüllten Kreise basieren auf GOME-Daten. Durch lineare Regression der

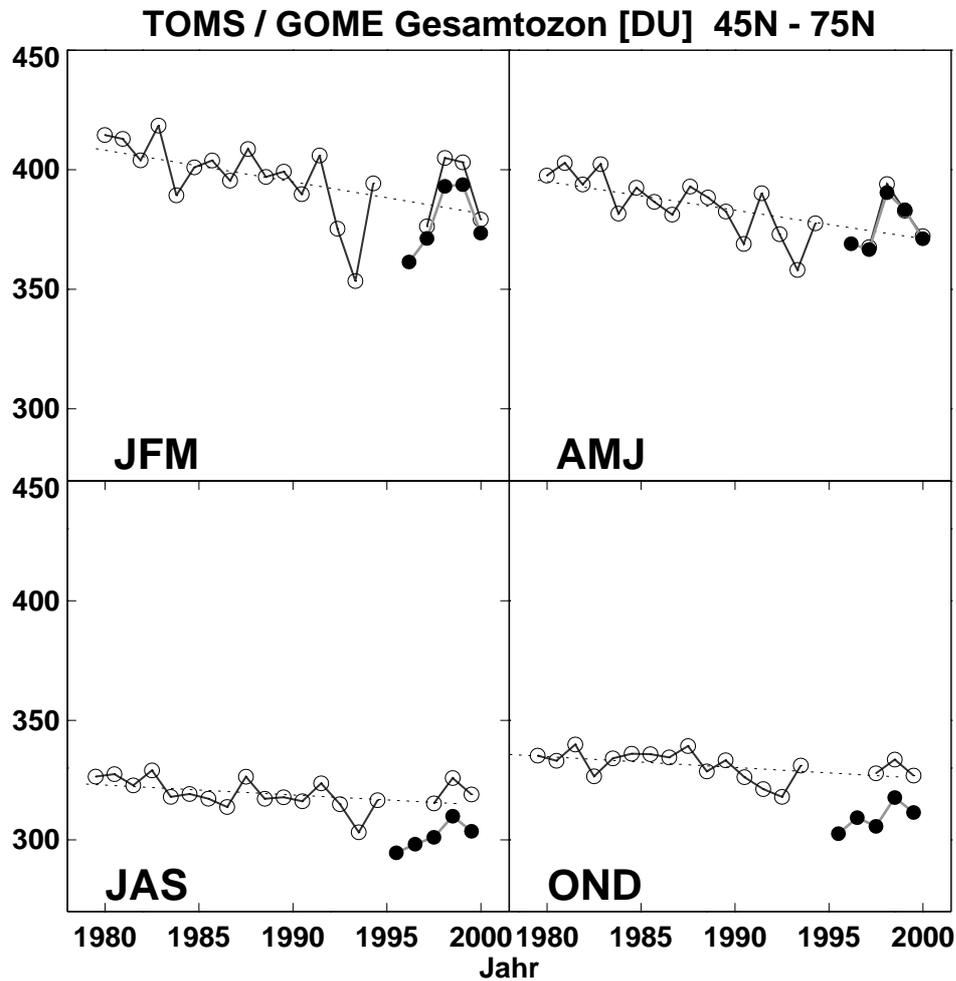


Abbildung 9.18: Ozontrends [DU] für die Breitengradzone von  $45^{\circ}\text{N}$  bis  $75^{\circ}\text{N}$  und den Zeitraum von 1979 bis 2000 aufgeteilt nach den Perioden Winter (JFM), Frühling (AMJ), Sommer (JAS) und Herbst (OND). Verwendet wurden Daten der verschiedenen TOMS Instrumente (*NIMBUS-7*, *METEO-3*, *Earth Probe*: leere Kreise) sowie von GOME (gefüllte Kreise).

TOMS-Daten von 1979 bis 1995 wurden Trend [DU/Jahr] und  $1\text{-}\sigma$  Varianz bestimmt. Man erkennt, dass die GOME-Jahresmittel systematisch unter den TOMS-Mitteln liegen, der Unterschied beträgt etwa 10DU (etwa 3–4%). Das deckt sich in etwa mit den Analysen von Bramstedt (2001), bei denen sowohl die GOME-DOAS als auch die EP-TOMS Ergebnisse mit Gesamtozondaten des Dobson-Netzwerks verglichen wurden. Während TOMS hierbei im Durchschnitt etwa 1,5% zu viel Ozon sieht, misst

GOME mit dem gegenwärtigen operationellen DOAS-Auswerteverfahren etwa 1,3% zu wenig, wobei die Abweichungen saisonal variieren. Aufgrund dieser Erkenntnisse kann man nicht von einer Umkehr des langfristig negativen Trends sprechen. In den letzten 20 Jahren nahm die Ozonschichtdicke um etwa 0,75 DU pro Jahr im Breitengürtel von  $\pm 60^\circ$  ab.

Die Jahresmittelwerte aus Abbildung 9.17 sind in Abbildung 9.18 nochmal für mittlere Breiten im Norden nach den Jahreszeiten aufgespalten worden. Der stärkste negative Trend liegt in der ersten Jahreshälfte vor. Hier stimmen die Ergebnisse von GOME und TOMS auch am besten überein. Im Sommer und Herbst gibt es eine größere Differenz von etwa 15 DU zwischen beiden Instrumenten. Diese Beobachtung deckt sich mit Vergleichen des GOME-Gesamtozons mit korrigierten TOMS Messungen von Bodeker et al. (2000). Hier wurde festgestellt, dass GOME generell bis zu 15 DU niedrigere Ozonsäulen misst. Lambert et al. (1999) hat zudem eine Sonnenzenitabhängigkeit in den GOME-Daten gefunden, die zu einer Unterschätzung von 5 bis 10% für hohe Sonnenzenitwinkel zwischen  $70^\circ$  und  $85^\circ$  in Sommer und Herbst führt.

Die Verwendung der Breitengradzone nördlich  $63^\circ\text{N}$ , gemittelt für den Monat März wie bei Newman et al. (1997), ist zur Bestimmung des polaren Ozonverlusts nur bedingt geeignet, wie Chipperfield und Jones (1999) zeigten. Der arktische Vortex ist im März dafür im Gegensatz zum antarktischen zu klein und variabel. So ist der Haupteinfluss für die rückläufige Entwicklung im Ozon bei dieser Betrachtungsweise die Dynamik, welche über den Winter auf die Polarregion wirkt. Weiterhin geschieht mehr als 50% der Ozonreduktion über einen langsamen Halogen-katalysierten Abbau im Laufe des gesamten Jahres.



## 10 Ozon in nordpolaren Breiten

Der verstärkte Abbau von Ozon zu Zeiten des Sonnenaufgangs über den Polen im Winter/Frühjahr, der unter dem Begriff Ozonlochs zusammengefasst wird, fand in den letzten beiden Jahrzehnten große Beachtung von Seiten der Wissenschaftler und der Allgemeinheit. Dabei ist der Begriff des Ozonloch bereits 1934 von Chapman eingeführt worden, wenn auch im Zusammenhang einer aktiven Beseitigung des Ozons zur besseren Beobachtung des Weltalls im ultravioletten Bereich (Wells, 1997).

Die Ozonentwicklung in der nordpolaren Region, wie sie mit Hilfe des DOAS-Algorithmus zur Bestimmung des Gesamtozons und des FURM-Algorithmus zur Bestimmung von Ozonprofilen gewonnen wurde, soll in diesem Kapitel dargestellt werden. Hierfür wurden GOME-Daten der Winter- und Frühjahrs-Periode von 1997 bis 2000 verwendet. Die Bestimmung des chemischen Ozonverlusts im arktischen polaren Vortex steht dabei im Fokus. Die gemessenen und die chemischen Abbauraten werden mit Literaturwerten verglichen. Verschiedene Messmethoden, wie Ozonsonden als in situ Verfahren und RAM (*Radiometer for Atmospheric Measurements*) als Fernerkundungs-Verfahren finden für die Vergleiche Verwendung. Damit atmosphärische Chemiemodelle zur Abschätzung zukünftiger Ozonverluste verwendet werden können, muss sichergestellt werden, dass die Modelle die heutigen Verluste richtig wiedergeben. Deshalb werden die GOME-Ergebnisse auch mit dem 3D-Chemie-Transport-Modell SLIMCAT (*Single Layer Isentropic Model for Chemistry and Transport*) verglichen.

Zur Erforschung der Ozonloch-Problematik wurden eine Vielzahl von Methoden entwickelt, um die beteiligten Prozesse adäquat erklären und eine quantitative Abschätzung der Ozonverluste treffen zu können. In diesem Zusammenhang können GOME/FURM Analysen einen wichtigen Beitrag im Rahmen von Messsituation und -genauigkeit liefern. Viele Experimente wie die Ballon-, Flugzeug- und Sonden-Kampagnen sind sehr material-

und personalintensiv und deshalb nicht kontinuierlich durchführbar. Da sind Satelliten-getragene Instrumente beispielsweise zur Überwachung der Polargebiete eine ideale Ergänzung. Sind in situ Verfahren das »Mikroskop«, mit denen gezielt Teile der Atmosphäre untersucht werden können, so sind Satellitenexperimente aufgrund der verwendeten Fernerkundungsverfahren eher das »Fernglas«, mit dem schnell und umfassend größere Gebiete überblickt werden können. Damit soll zum Ausdruck gebracht werden, dass die Verfahren sich nicht gegenseitig ausschliessen, sondern ergänzen. Satelliteninstrumente wie GOME können zwar keine horizontal und vertikal hochaufgelösten Profile liefern, dafür aber globale, tägliche Messungen machen.

In der letzten Dekade sind vergleichsweise viele Winter-Perioden in der Arktis durch eine heterogene Prozessierung der Stratosphäre infolge geringerer Temperaturen und, damit verbunden, einem substanziellen Ozonverlust charakterisiert gewesen. Eine Vielzahl von in situ- und Fernerkundungstechniken bestätigen dies, so beispielsweise Satellitenbeobachtungen von HALOE (Müller et al., 1997a,b) und MLS (Manney et al., 1997), sowie Studien, die mit Hilfe des etablierten Sondennetzwerkes insbesondere in nördlichen Breiten erstellt wurden (Rex et al., 1997; Knudsen et al., 1998b). Alle Daten zeigen ein konsistentes Bild der polaren Stratosphäre im Winter/Frühjahr. In Abhängigkeit von Vortexstärke und -position sowie von der Temperaturentwicklung im Vortex kommt es zu einer mehr oder minder starken chemischen Zerstörung des Ozons in bestimmten Höhenschichten der Stratosphäre.

Die Entwicklung der Ozonschicht in der Nordhemisphäre ist jährlichen Variationen unterworfen, die aber nicht nur im Winter/Frühjahr auftreten. In Abbildung 10.1 sind Monatsmittel des GOME-Gesamtozons für Breiten oberhalb 50°N für die Jahre 1996 bis 2000 dargestellt. Unterschiede zwischen den einzelnen Jahre sind im Ozonverlauf zu erkennen. Diese sind durch die Mischung dynamischer und chemischer Faktoren bedingt und in den Monaten Januar bis Mai am stärksten ausgeprägt. Der starke Ozonabbau im polaren Vortex, wie er insbesondere in den Jahren 1996, 1997 und 2000 auftrat, hat auch Auswirkungen auf das Gesamtozon in den Sommermonaten. So findet man in der Folge durchweg niedrigere Ozonwerte in der zweiten Jahreshälfte in mittleren bis hohen Breiten auf.

Der Unterschied zwischen den September-Mittelwerten von 1998 und

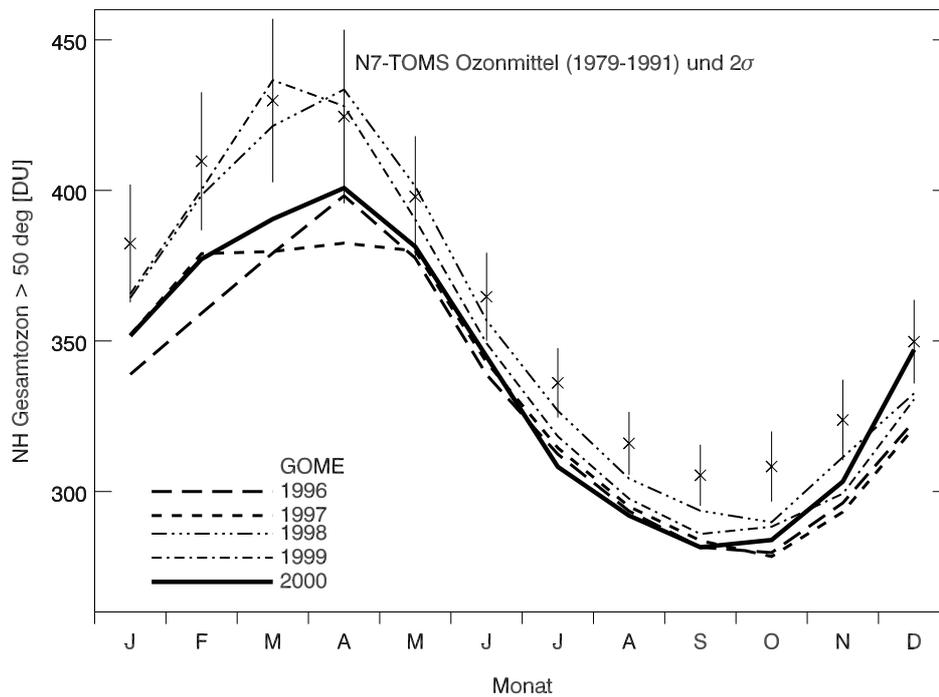


Abbildung 10.1: Zonal- und monatsgemitteltes GOME-Gesamt Ozon [DU] nördlich  $50^{\circ}\text{N}$  für die Jahre 1996 bis 2000. Zum Vergleich sind Ozonmittelwerte und die  $2\sigma$ -Standardabweichung von NIMBUS-7-TOMS für die Messperiode von 1979 bis 1991 als Kreuze und senkrechte Balken aufgetragen.

2000 beträgt beispielsweise etwa  $12,5\text{DU}$ . Ob dies eine direkte Folge irreversibler Ozonverluste in hohen Breiten und dem Einmischen in mittlere Breiten oder eine natürliche Variation der dynamischen Prozesse ist, lässt sich hier nicht eindeutig klären. Große Volumina ozonarmer Luft können jedoch über Mischungsprozesse das Gesamtbild der Nordhemisphäre beeinflussen, weil in der unteren Stratosphäre photochemische Bildung und Verlust stark eingeschränkt sind. Die Lebensdauer von Ozon beträgt dort Wochen bis Monate. Auffällig ist jedoch der große Verlust von Ozon, der im Vergleich zu Messungen von NIMBUS-7-TOMS, gemittelt über die Periode von 1979 bis 1991, über das ganze Jahr und insbesondere im Sommer/Herbst auftritt. Dies kann eine direkte Folge der Halogen-katalysierten Gasphasen-Chemie sein, die über das ganze Jahr wirkt (Chipperfield und Jones, 1999).

## 10.1 Die arktischen Winter/Frühjahrsperioden 1997-2000

Betrachtet man die Winter- und Frühjahrsperioden seit Beginn der GOME-Messungen, stellt man eine große Variabilität in der stratosphärischen Dynamik fest, die sich auch in den Ozonfeldern finden lässt (Eichmann et al., 1998, 1999b). Dies zeigt sich in sehr unterschiedlichen stratosphärischen Temperaturverläufen, die in Folge von stratosphärischen Wellenbewegungen weitreichende Auswirkungen auf die Vortexevolution haben.

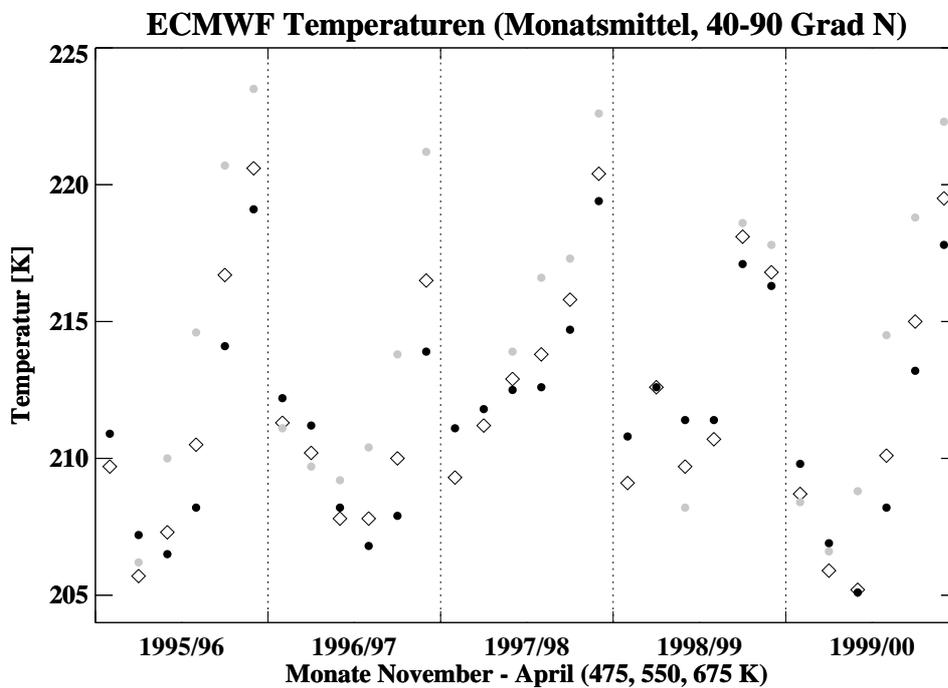


Abbildung 10.2: Monatsgemittelte Temperaturen der Stratosphäre auf den Isentropen 475 K (●), 550 K (◇) und 675 K (○). Gemittelt wurden ECMWF-Temperaturfelder für die Nordhemisphäre zwischen 40°N und dem Nordpol für die Monate von November bis April und die Jahre 1995/1996 bis 1999/2000.

In Abbildung 10.2 sind Temperatur-Monatsmittelwerte der nördlichen Halbkugel zwischen 40° und Nordpol gezeigt. Die Jahre 1996 bis 2000 sind dabei für November bis April und die Isentropen 475 K (schwarzer, gefüllter Kreis), 550 K (offene Raute) und 675 K (grauer, gefüllter Kreis) dargestellt. In der Stratosphäre ist ein mit in die Höhe abnehmender Tem-

peraturenverlauf zu Anfang des Winters zu erkennen. Er wird durch das Ausbleiben solarer Strahlung in der polaren Nacht und die damit einhergehende Unterbindung der photochemischen Ozon-Reaktionen hervorgerufen. Die stratosphärischen Temperaturen sind in größeren Höhen dann am niedrigsten<sup>1</sup>. Im Laufe des Winters normalisiert sich der Temperaturverlauf wieder. Das bedeutet, dass die Temperaturen in der Stratosphäre aufgrund der Strahlungsabsorption von Ozon und der Umwandlung in Wärme mit der Höhe wieder zunehmen. Der Temperaturmittelwert ist von den nördlicheren Breiten dominiert, welche im November, Dezember und Januar im Dunkeln liegen und wo sich das allgemeine stratosphärische Temperaturprofil mangels geringer Sonneneinstrahlung nicht einstellen kann.

In der Schicht von  $\theta = 475$  K liegt der Startwert im November für alle Jahre nahezu identisch um die 210 K, ähnliches gilt für  $\theta = 550$  K. Kalte Winter zeichnen sich dann durch eine weitere Abkühlung aus, die bis in den März reichen kann, wie zum Beispiel in 1997. Die warmen Winter 1998 und 1999 zeigen dagegen das Minimum im November und einen Anstieg der mittleren Temperatur bis in den April. Am Ende liegen die Temperaturen für alle Jahre bei etwa 217 K mit Ausnahme der Saison 1997, wo die April-Mittelwerte mit 214 K noch ungewöhnlich niedrig waren. Die tiefsten Temperaturen wurden im Januar 2000 mit  $T = 205$  K gemessen, dieses Jahr zeigt auch die größten Ozonverluste.

Die Evolution von Vortex und PSC-Fläche sind in Abbildung 10.3 dargestellt. Die vier Jahre 1997 bis 2000, in denen eine Auswertung von Ozonprofilen im Vortex bisher möglich war, sind aufgetragen. Die schwarze Linie zeigt die Entwicklung der Vortexfläche [ $10^7$  km<sup>2</sup>] auf 475 K für eine PV von 38 PVU. Darunter ist die Fläche der Temperaturen unterhalb 195 K im Vortex grau schattiert eingezeichnet. Dies gibt einen Anhalt über die Menge ozonzerstörender Substanzen, die durch PSC-Bildung entstehen. Für diese Höhe liegt die Grenztemperatur zur Entstehung von PSCs des Typs I bei etwa 195 K.

Die grauen Kreise geben Tage an, an denen FURM-Daten für den Vortex vorliegen. Durch Summation der GOME-Bodenpixelgrößen erhält man die abgetastete Vortexfläche. Man sieht, dass eine umfassende Vortexabde-

---

<sup>1</sup> Im November gibt es für 675 K nicht immer ECMWF Daten wegen einer Höhenlimitierung, die sich nach Isobaren richtet.

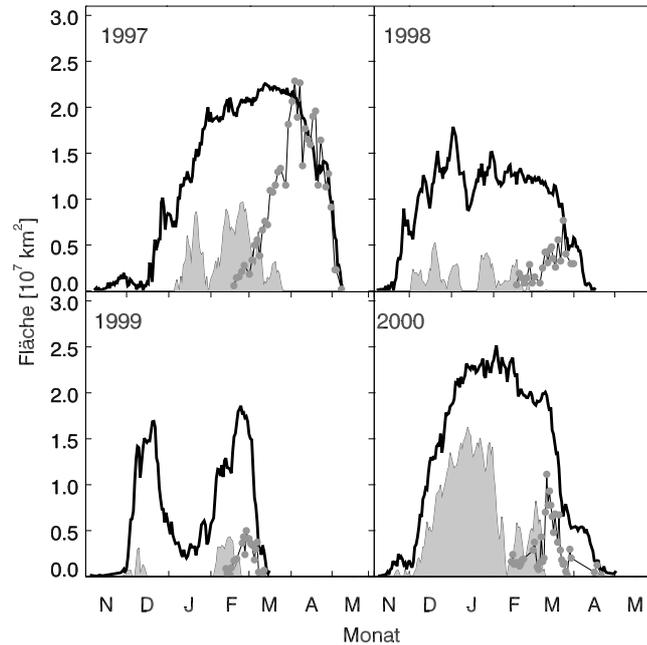


Abbildung 10.3: Fläche des arktischen Vortex beschrieben durch die potentielle Vorticity größer 38 PVU auf der 475 K Isentrope (dicke, schwarze Linie) und der Temperatur  $T < 195$  K (grau schattierte Linie) [ $10^7$  km<sup>2</sup>] für die Periode von Anfang November bis Ende April aus UKMO-Daten. Die grauen Kreise bezeichnen die aufsummierte Fläche der GOME Pixelgrößen innerhalb des Vortex, die beim FURM-Retrieval verwendet wurden. Von oben links bis unten rechts sind die Winter 1996/97 bis 1999/2000 gegenübergestellt.

ckung über die gesamte Periode tiefer Temperaturen im Vortex nicht möglich war. Eine vollständige Abdeckung des Vortex ist 1997 ab April gegeben, höhere Werte resultieren aus der Überschneidung von GOME-Orbits in hohen Breiten und damit einer Mehrfachzählung bestimmter Gebiete. Da der Vortex in meridionaler Richtung aufgrund von Durchmischungsprozessen annähernd homogen ist, wird eine vollständige Abdeckung nicht benötigt. In zentraler Richtung auftretende Gradienten im Ozonverlust sind zu Beginn der Beobachtungsperiode nicht aufzulösen, weil nur ein schmales Band innerhalb des äusseren Rings des Vortex gesehen wird. Die Gradienten sind auch im Verlauf nur schwer zu trennen aufgrund der Pixelgröße von GOME und der damit verbundenen horizontalen Verschmierung über *PV*-Grenzen hinweg. Trotzdem kann man mit GOME auch im Vortex Gebiete mit höheren Ozonverlusten von anderen Gebieten differenzieren.

Charakterisierung des polaren Vortex				
Jahr	$\overline{A_{PV}}$	$D_{PV}$	$\overline{A_T}$	$D_T$
1995/96	1,52	168	0,37	94
1996/97	1,23	193	0,18	83
1997/98	0,94	146	0,09	65
1998/99	0,81	102	0,06	28
1999/00	1,28	168	0,45	107
1999(SH)	2,51	253	1,14	164

Tabelle 10.1: Mittlere Vortexfläche  $\overline{A_{PV}}$  [ $10^7 \text{ km}^2$ ] für  $PV > 38 \text{ PVU}$  gemittelt über die Dauer  $D_{PV}$  [Tage] und mittlere Fläche der Temperaturen unter 195 K  $\overline{A_T}$  und Dauer  $D_T$ . Zum Vergleich der nordhemisphärischen Vortexgrößen von 1995 bis 2000 ist der südhemisphärische polare Vortex von 1999 aufgeführt.

Die mittleren Vortexflächen sowie Temperaturflächen unter 195 K sind noch einmal in Tabelle 10.1 für die GOME-Beobachtungsperiode von 1995 bis 2000 zusammengefasst. Zum Vergleich sind die Ausmasse des südpolaren Vortex von 1999 mit eingetragen. Deutliche Unterschiede in Vortexgröße und Periode sind zwischen beiden Hemisphären auszumachen. Der antarktische Vortex ( $2,51 \cdot 10^7 \text{ km}^2$ ) ist im Mittel etwa doppelt so groß wie der Arktische. Er existiert etwa ein dreiviertel Jahr (253 Tage) lang. Die PSC-Fläche ist im Norden ebenfalls deutlich kleiner und nicht so lang anhaltend wie im Süden (167 Tage). Der Winter 1999/2000 war aber relativ lange kalt (107 Tage), während es 1999 nur 30 kalte Tage gab.

Zur Bestimmung von Ozonverlustraten im polaren Vortex wurden diejenigen Profile ausgewählt, deren Fußpunkt (Mittelpunkt des GOME-Abtastbereiches) und Ränder innerhalb der 42PVU-Isolinie liegen. Die 42PVU Isolinie liegt oberhalb des PV-Gradientenmaximums bei 475 K potentieller Temperatur über die äquivalente Breite für diese arktischen Perioden und eignet sich daher als Angabe für das Vortexinnere. Die Höhe der Vortexgrenze wurde entsprechend des Maximums der atmosphärischen vertikalen Ozonkonzentration gewählt, was etwa der Höhe der 475 K Isentrope entspricht (etwa 20 km). Aufgrund der intensiven Computerbeanspruchung infolge der relativ langwierigen Ableitung von Ozonprofilen war es bisher

nicht möglich, eine komplette Auswertung der Perioden vorzunehmen. So wurde hauptsächlich alle zwei Tage eine Auswertung nördlich von 40 bis 50°N gemacht.

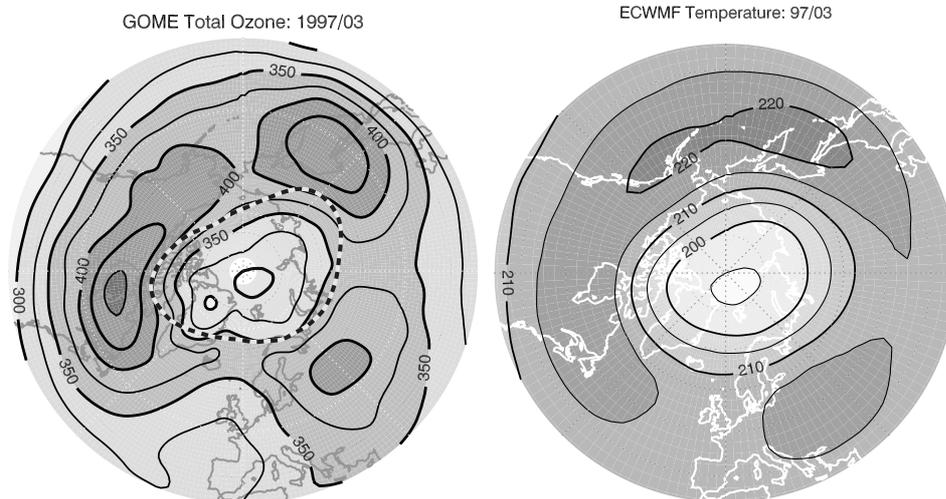


Abbildung 10.4: Märzmittelwerte 1997 des GOME Gesamtozons (links) und Temperatur (rechts) in der nördlichen, unteren Stratosphäre (475 K). Monatsmittelwerte der potentiellen Vorticity auf 475 K für 38PVU sind als schwarz-graue Linie in die Ozonkarte eingetragen. Der Abstand der Ozon-Konturlinien beträgt 25DU und der Temperatur 5 K.

In den folgenden Teilkapiteln werden die polaren Winter der Nordhemisphäre entsprechend ihres stratosphärischen Temperaturverhaltens genauer analysiert.

### 10.1.1 Die kalte Stratosphären 1997 und 2000

Die Nordhemisphäre zeichnet sich, wie bereits beschrieben, durch eine größere dynamische Variabilität im Vergleich zur Südhemisphäre aus. So ist der nordpolare Vortex durch Wellenbrechungsereignisse starken Deformationen ausgesetzt und bricht deshalb früher als im Süden zusammen.

Der polare Winter 1996/1997 war der erste, für den Ozonprofilrechnungen mit GOME möglich waren. Der Vortex war im Frühjahr 1997 gut ausgebildet, kalt und symmetrisch. Er formte sich Mitte Dezember relativ spät und hat seine maximale Fläche auf 475 K erst Mitte März erreicht. Die mitt-

lere Fläche des Vortex ist mit  $\overline{A_{PV}} = 1,23 \cdot 10^7 \text{ km}^2$  zwar kleiner als in 1996 (1,53), dafür war der Vortex aber durchschnittlich 193 im Vergleich zu 168 Tage existent. In der Zeit von Anfang Januar bis Anfang April traten großflächig Temperaturen unterhalb 195 K auf, welche zur Bildung von PSCs ausreichen. Im März wurden die kältesten Temperaturen seit 1979 gemessen (Coy et al., 1997). Die mittlere Größe der Temperaturfläche unter 195 K lag bei  $0,18 \cdot 10^7 \text{ km}^2$  (0,37) bei einer Dauer von 83 Tagen (93). Im Vergleich dazu hat der südpolare Vortex nahezu unabhängig vom Jahr eine Fläche von  $\overline{A_{PV}} = 2,51 \cdot 10^7 \text{ km}^2$  (1999) bei einer Dauer von 253 Tagen, die Temperaturfläche ist dabei  $1,14 \cdot 10^7 \text{ km}^2$  groß bei einer Dauer von 164 Tagen. Aufgrund schwacher Aktivität von Wellen, die aus der Troposphäre in die Stratosphäre propagieren, war der stratosphärische Winter lange kalt (Coy et al., 1997).

In Abbildung 10.4 sind Konturkarten von Monatsmittelwerten des GOME-Gesamtozons und der ECMWF-Temperatur auf 475 K dargestellt. Im Vortexinneren erkennt man die Reduktion im Gesamtozon auf Werte unter 350 DU. Ein Gürtel hoher Ozonwerte mit mehr als 400 DU liegt um den Vortex herum. Ohne chemische Ozonverluste sollte im Innern des Vortex mindestens so viel Ozon vorhanden sein wie knapp außerhalb, wie man aus den klimatologischen Daten von TOMS Anfang der 80er Jahre sehen kann. Man kann aus dieser Darstellung bereits einen Gesamtverlust von 50–100 DU abschätzen.

Der Vortex war in der Zeit von Anfang Februar bis Mitte April sehr stabil, wie in Abbildung 10.5(a) zu sehen ist. Die Fläche des Vortex (graue Linie) ist bis Anfang April nahezu konstant, im April ist ein leichter Rückgang festzustellen. Ab Anfang Mai beginnt der endgültige Zusammenbruch des Vortex. Mit Hilfe des Trajektorienmodells TANGO wurden tägliche RDF-Rechnungen (*Reverse Domain Filling*) während der Winter/Frühjahr Periode von Anfang Januar bis zum Zusammenbruch des Vortex durchgeführt. Hierzu wurden 10-Tages-Rückwärtstrajektorien berechnet und geprüft, ob eine Luftmasse entlang der Trajektorie in den beziehungsweise aus dem Vortex wandert. In die Auswertung gingen etwa 19000 über die Nordhemisphäre von 35 bis 89°N gleichmäßig verteilte Orte auf einer festen Isentrope ein. Dargestellt in der Abbildung ist die Fläche der Luftpakete, die sich aus dem definierten Gebiet bewegen gemessen als prozentualer Anteil der Vortexfläche. Die schwarze gepunktete Linie beschreibt Luftmassen, die von unter 30 PVU kommend innerhalb von 10 Tagen die Grenze von 42 PVU

in den Vortex überwunden haben. Die gestrichelte Linie stellt Luftmassen dar, die aus dem Vortex von über 42 PVU nach unter 30 PVU wandern. Die Wahl der Grenzen ist subjektiv und stellt eine Fehlerquelle dar. Die Darstellung soll mehr der Abschätzung dienen und sichere Perioden feststellen, in denen horizontale Austauschprozesse vernachlässigt werden können. Aus- und Einfluss von Luftmassen sind 1997 weitestgehend unterbunden, erst beim Zusammenbruch des Vortex ab Anfang Mai gibt es nennenswerte Austauschprozesse.

Die Schwierigkeiten des Austauschs von Luftmassen über den Vortexrand werden in verschiedenen Artikeln thematisiert, siehe beispielsweise Sobel et al. (1997) und Referenzen darin. Das Ausfließen von Luftmassen aus dem Vortex sollte keinen direkten Effekt auf Ozonverlusten im Vortex haben. Es sei denn, dass die Ozon-zerstörenden Gase mit ausfließen und diese nicht durch diabatisches Absinken aus der Höhe ersetzt werden. Dann würde sich der Abbau des Ozons verlangsamen. Das kann aufgrund dieser Berechnungen aber nicht entschieden werden. Ein Abstreifen von Luftmassen aus dem Randbereich kann auch zur Folge haben, dass sich die gemessenen Abbauraten im Vortex erhöhen. Im Randbereich des Vortex sind die Temperaturen höher und der Ozonabbau nicht so stark ausgeprägt. Es existieren somit Gradienten in der Ozonkonzentration mit niedrigeren Werten weiter im Vortexinneren. Wird Luft mit geringeren Ozonverlusten aus dem Vortex entfernt, so folgt für die Ozonkonzentration im Vortexmittel eine Verringerung. Der Ausfluss ozonarmer Luft aus dem Vortex führt zur Verdünnung des Ozongehalts in der unteren Stratosphäre in mittleren Breiten. Diese Verdünnung ist aufgrund der langen Lebensdauer prägend für den weiteren Verlauf des Jahres.

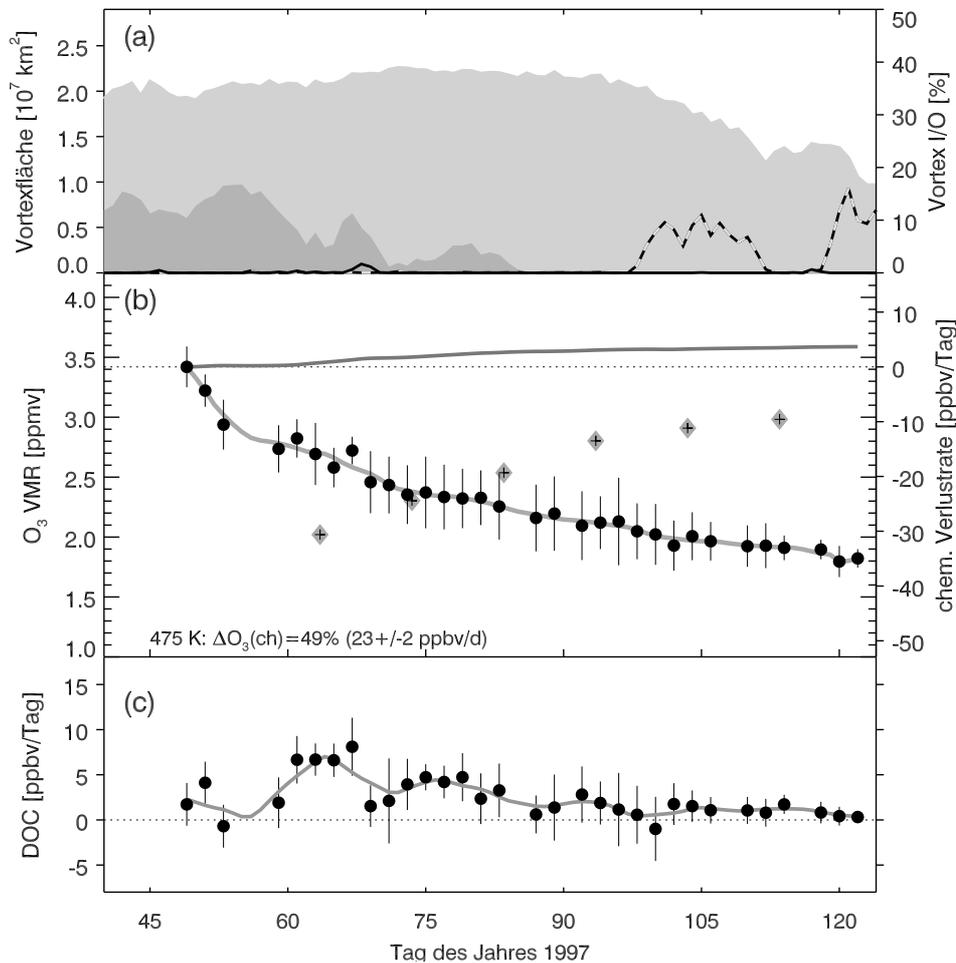


Abbildung 10.5: (a) Vortexgröße (38PVU, graue Linie) und mögliche PSC-Fläche (195 K, graue Fläche) sowie der Austausch von Luftmassen [%] über die Vortexrand-Region (30–42PVU), berechnet durch isentrope RDF-Rechnungen aus UKMO-Daten mit dem Trajektorienmodell TANGO für die potentielle Temperatur 475 K. Die gepunktete Linie stellt den Ausfluss, die gestrichelte den Einfluss von Luft dar. (b) FURM-Vortexmittelwerte [ppmv] von Ozon auf der Isentropen 475 K berechnet aus GOME-Spektren (schwarze Kreise). Der innere Vortex ist definiert als die Fläche der potentiellen Vorticity oberhalb 42PVU. Die senkrechten Balken geben die Varianz ( $1\sigma$ ) des Ozonmittelwertes im Vortex an. Der integrierte Ozonanstieg durch diabatisches Absinken ist durch die dicke graue Linie dargestellt. Die dunkelgraue Linie zeigt die Cubic-Spline Interpolation der Ozonmittelwerte über 5 Tage geglättet. Die grauen Rauten geben über 10 Tage gemittelte Ozonverlustraten [ppbv/Tag] wieder. (c) Tägliche Erhöhung von Ozon [ppbv/Tag] durch diabatisches Absinken gemittelt über alle GOME Pixel aus FUED-Rechnungen. Die durchgezogene Linie gibt die Cubic-Spline Interpolation mit anschließender Glättung über 5 Tage wieder, die senkrechten Linien die Standardabweichung.

Die photochemische Zeit zum Ersetzen des Ozons ist in der extra-tropischen Stratosphäre länger als ein Monat. Knudsen et al. (1998a) zeigen aufgrund von RDF-Berechnungen, dass diese Ausdünnung etwa ein Drittel des gesamten Verlusts in mittleren Breiten ausmacht. Zwei Drittel des Verlusts in den Trendberechnungen werden dagegen durch die in situ Zerstörung des Ozons aufgrund einer veränderten homogenen Chlorchemie, die das ganze Jahr wirkt, verursacht.

Nach Abbildung 10.5(a) kann die gesamte Messperiode 1997 als unbeeinflusst durch Austauschprozesse von Vortexluft mit Luft aus mittleren Breiten bezeichnet werden. Änderungen im Ozon auf 475 K sind damit ausschließlich durch chemische Prozesse und diabatisches Absinken ozonreicher Luft bestimmt.

In Abbildung 10.5(b) wird die Abnahme des stratosphärischen Ozons [ppmv] im polaren Vortex für die Winter/Frühjahr-Periode vom 18. Februar bis zum 2. Mai 1997 dargestellt. Die schwarzen Kreise geben die vortexgemittelten FURM-Messungen wieder, die senkrechten Linien die zugehörige 1- $\sigma$  Standardabweichung der Ozon-VMR. Die Varianz gibt Hinweise auf mögliche statistische Fehler in der Auswertung und zugleich die Inhomogenität des Vortex auf Isentropen, sie ist eine Mischung aus beiden. Die Ozonänderung DOC [ppbv/Tag], die aufgrund diabatischer Absinkprozesse entsteht, sowie deren 1- $\sigma$  Standardabweichung, sind im unteren Teilbild (c) zu sehen. Der Anstieg der Ozon-VMR aufgrund des Absinkens der stratosphärischen Luft, ausgehend vom erstem Messpunkt, ist in (b) aufgetragen, dargestellt durch die graue Linie. Zusätzlich geben die grauen Rauten die über 10 Tage gemittelten Absinkraten des Ozons wieder.

Aus den Anfangs- und Endpunkten der Messung ergibt sich für 1997 ein prozentualer Totalverlust von knapp 45 % sowie ein mittlerer täglicher Verlust von 20 ppbv/Tag. GOME misst dabei eine Ozonänderung von etwa 3,25 ppmv (Tag 50) auf 1,8 ppmv (Tag 119) sowie einen diabatischen Beitrag von insgesamt 0,15 ppmv. Daraus ergibt sich ein chemischer Verlust von 1,6 ppmv. Die zeitaufgelösten Verlustraten zeigen einen relativ stetigen Abbau des Ozons, welche mit fortschreitender Zeit gegen Null gehen. Die höchste Verlustrate trat zu Beginn der Messperiode mit  $-70$  ppbv/Tag auf. Dies scheint etwas zu hoch, Probleme mit der Vortexabdeckung beziehungsweise mit der Abtastung nur des Vortexrandbereichs führen hier zu einer Überschätzung der ersten Messwerte.

Die Ozonverluste decken sich mit Messungen des RAM, das vom IUP Bremen in Ny-Ålesund betrieben wird. Für die Periode von Anfang März bis Mitte April wurde mit dem RAM-Instrument in 475 K Höhe ein chemischer Gesamtverlust von 1,6 ppmv (55 %) bestimmt, das entspricht etwa 20 ppbv/Tag (Sinnhuber, 1999) für ähnliche Zeiträume wie bei den GOME-Messungen. GOME misst den gleichen chemischen Verlust, jedoch liegt der prozentuale Verlust bei GOME aufgrund eines höheren Startwerts im Ozon nur bei 46 %.

HALOE-Messungen, die während der Periode zwischen 4. März und 4. April 1997 gemacht wurden (Müller et al., 1997a; Pierce et al., 1997), zeigen am 26. März minimale VMR auf 480 K. Die Ergebnisse wurden mit der Methode der RDF-Trajektorienkartierung erhalten, um die Anzahl von Messungen zu erhöhen (Pierce et al., 1997). Es wurden Inhomogenitäten in den Ozon-Werten innerhalb des Vortex gemessen, die Mischungsverhältnisse reichten im Vortex von etwa 1 ppmv bis 3 ppmv, was den Werten in der Region großer PV-Gradienten außerhalb des Vortex entspricht.

Auswertungen mit der Match-Methode zeigen einen Ozonabbau von etwa  $25 \pm 6$  ppbv/Tag (Schulz et al., 2000) bei einem Startwert von 2,7 ppmv für die Periode 16. Februar bis 2. März. MLS-Messungen<sup>2</sup> (Manney et al., 1997) liefern für die Periode 20. bis 26. Februar etwa 36 ppbv/Tag. Hier sind die FURM-Ergebnisse etwas höher mit etwa 39 ppbv/Tag. In der Periode vom 20. Februar bis zum 4. März 1997 sind bei Match und FURM die größten Abbauraten zu beobachten.

Die FURM-Daten zeigen weitere Verluste im Ozon bis Anfang Mai, was sich auch mit Sondendaten und Messungen von RAM (Sinnhuber et al., 1998) verifizieren lässt (siehe Kapitel 10.2). Die große Stabilität des Vortex bis in den Mai hinein brachte anhaltende Ozonverluste. Hansen und Chipperfield (1999) haben dazu Lidar-Beobachtungen des ALOMAR in Andoya (69,3°N, 16,0°O) am Rand des polaren Vortex mit SLIMCAT Modellierungen für die Periode Mitte Dezember bis Mitte Mai verglichen. In der Auswertung lag das Maximum des Ozonabbaus um den 5. Mai in Höhen bis 550 K. Dies deckt sich mit den FURM-Analysen, bei ein fortdauernder

---

2 Der *Microwave Limb Sounder* (MLS) macht Stratosphärenmessungen von Bord des UARS-Satelliten aus seit September 1991. Er wurde im Juli 1999 aufgrund von Problemen mit dem Antennenscanmechanismus zwischenzeitlich außer Betrieb genommen.

Ozonverlust bis zum Zusammenbruch des Vortex Anfang Mai beobachtet wurde. Zurückzuführen ist dies auf den Übergang einer PSC-getriebenen Halogen-Chemie zu Anfang auf eine  $\text{NO}_x$ -dominierte Chemie (Sommerchemie) im April und Mai (Hansen und Chipperfield, 1999).

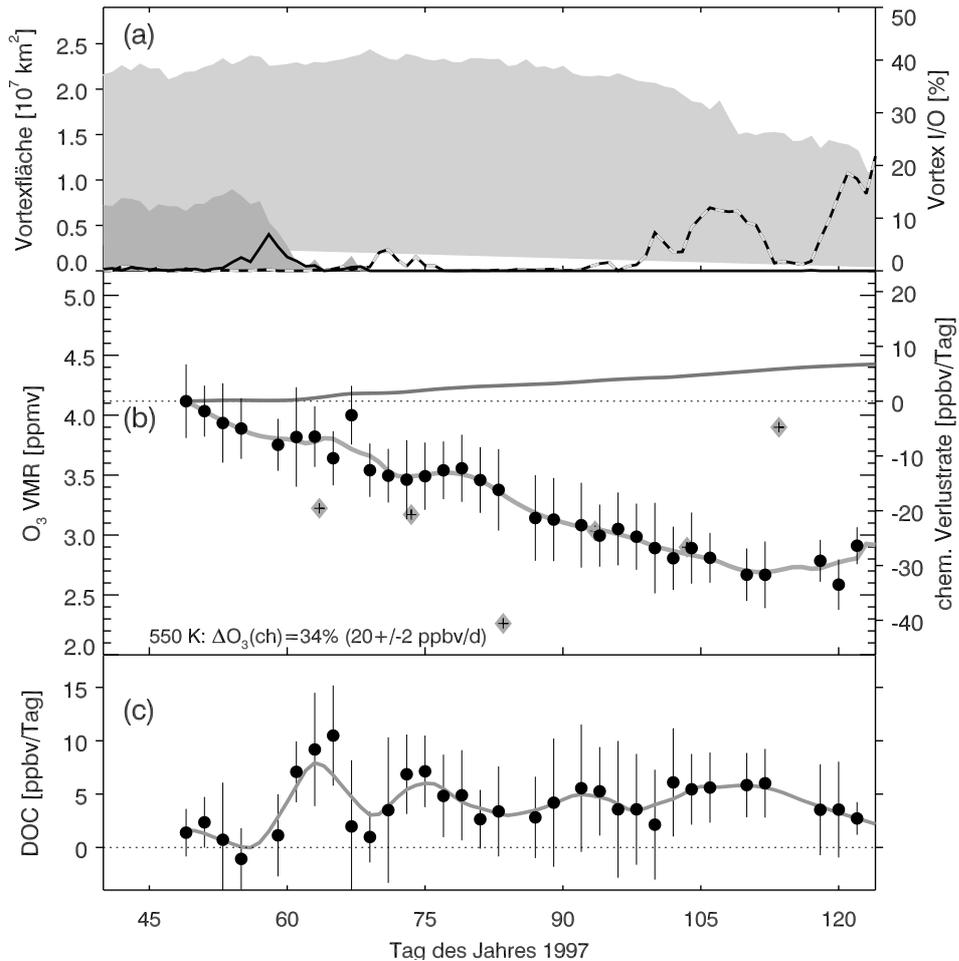


Abbildung 10.6: Chemische Ozonverluste von GOME für 1997 wie in Abbildung 10.5, jedoch für 550 K.

In Abbildung 10.6 ist der Ozonabbau für 550 K dargestellt. In dieser Höhe geht Ozon von etwa 4,0 ppmv (Tag 51) auf 2,6 ppmv (Tag 110) zurück. Der diabatische Beitrag zum Anstieg des passiven Ozons ist mit 0,3 ppmv etwas größer als auf 475 K. Daraus ergibt sich ein maximaler chemischer Verlust

von 1,7 ppmv (40%) bei einer Abbaurrate von 24 ppbv/Tag. Nach dem Tag 112 steigt das Ozon wieder leicht auf 2,9 ppmv an.

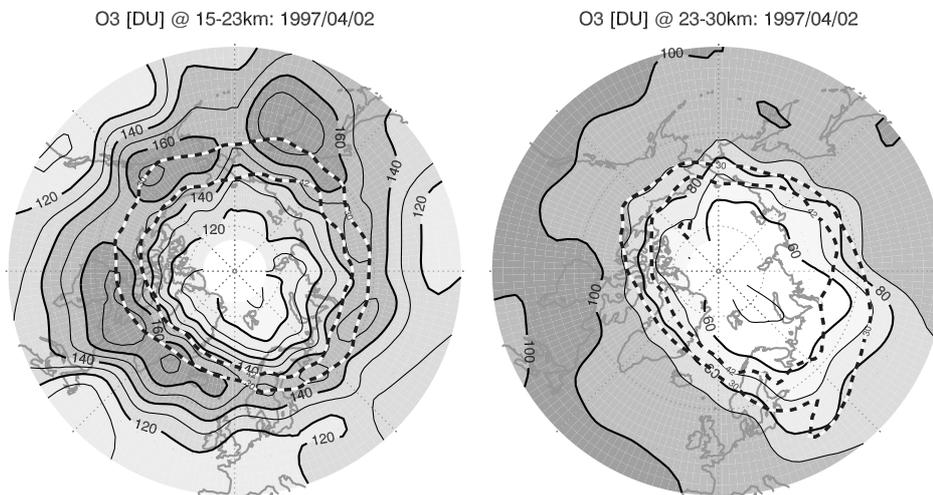


Abbildung 10.7: FURM Schichtozon [DU] vom 2. April 1997 für die untere Stratosphäre 15–23 km (links) und die mittlere Stratosphäre 23–30 km (rechts). Die Grenzregion des polaren Vortex ist als schwarz-weiße Linie für den jeweiligen Höhenabschnitt dargestellt (MPV: 30 und 42 PVU).

Das Schichtozon gegen Ende der chemisch bedingten Ozonverluste ist für den 2. April 1997 in Abbildung 10.7 dargestellt. Die untere Stratosphäre ist dynamisch deutlich aktiver mit einem Ozongürtel um den polaren Vortex. Hier machen sich troposphärische Wellenanregungen bemerkbar. Auch in der mittleren Stratosphäre ist ein Ozondefizit zu beobachten, die Ozonsäule reicht von durchschnittlich mehr als 90 DU außerhalb des Vortex auf unter 60 DU innerhalb, das entspricht einem Verlust von mehr als 30 DU. In der Schicht von 15–23 km, wo infolge der PSC-Bildung der Hauptabbau stattfindet, findet man mehr als 150 DU außerhalb und unter 140 DU Ozon innerhalb des Vortex. Tief im Vortexinneren im Bereich der kältesten Temperaturen treten Ozonwerte von weniger als 100 DU auf. Das heisst, dass der Abbau regional unterschiedlich entsprechend den stratosphärischen Temperaturen abläuft und eine Vermischung von Luftmassen im Vortex nicht vollständig stattfindet ist.

Die Winter/Frühjahrsperiode 1999/2000 war ebenfalls geprägt von sehr kalten stratosphärischen Temperaturen (Manney und Sabutis, 2000). In der

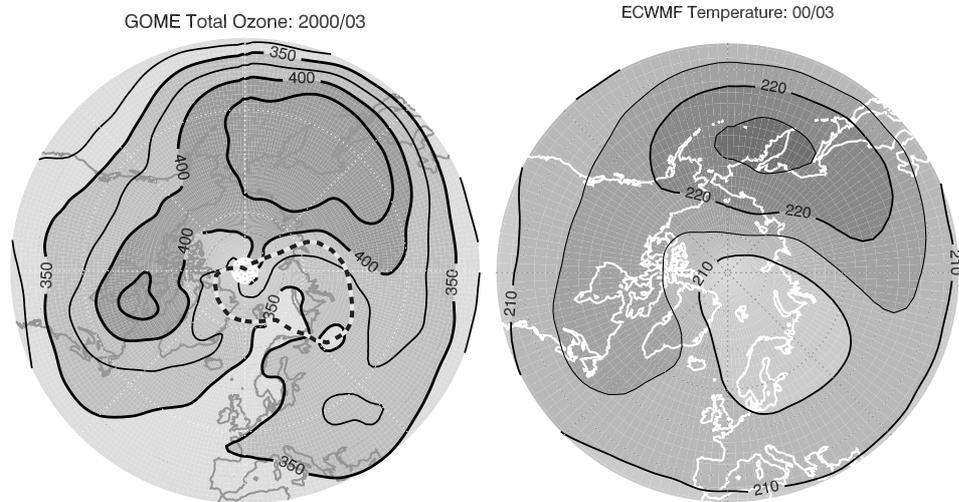


Abbildung 10.8: Märzmittelwerte 2000 des GOME Gesamtozons (links) und der ECMWF Temperatur (rechts) in der nördlichen, unteren Stratosphäre (475 K).

arktischen Winterperiode 2000 fand eine großangelegte Untersuchung der polaren Breiten durch das NASA SAGE III *Ozone Loss and Validation Experiment* (SOLVE) und das *Third European Stratospheric Experiment on Ozone* (THESEO) der Europäischen Union statt (Braathen, 2001). Die gemeinsame Feldkampagne diente der Untersuchung der chemischen und dynamischen Faktoren, die das arktische Ozon bestimmen, sowie der Verbesserung der Vorhersagekraft auf künftige Änderungen des arktischen Ozons. Es fanden im Rahmen der Kampagnen Messungen von Ozon und weiteren chemisch wichtigen atmosphärischen Spurengasen statt und die chemischen und optischen Eigenschaften der PSCs wurden im Detail untersucht. Hierzu fanden Instrumente an Bord von Flugzeugen, Ballons und Satelliten sowie bodengestützte Instrumente Verwendung. Das IUP Bremen unterstützte diese Kampagnen durch eine Near-Real-Time Auswertung von GOME-Daten. Ergebnisse des Gesamtozons, der Ozonprofile und anderer Spurengase wie BrO, OCIO und NO<sub>2</sub> wurden im Web zur Verfügung gestellt (<http://www.physik.uni-bremen.de/gomenrt2000/>). In der arktischen Stratosphäre 2000 waren die Temperaturen tief genug zur verstärkten Bildung von PSCs und der damit verbundenen heterogenen Chlorchemie zur Zerstörung von Ozon im Gegensatz zu den relativ warmen Wintern in 1998 und 1999 (Rex et al., 2000; Schulz et al., 2001).

Drei Verfahren zur Bestimmung des chemischen Ozonverlusts fanden

während der Kampagnen unter anderen Verwendung. Im Match-Verfahren werden Sonden an verschiedenen Orten koordiniert gestartet, um identische Luftpakete mehrmals zu beproben. Dabei werden Luftmassentrajektorien bestimmt, um den Weg eines bereits vermessenen Luftpakets zu verfolgen und dann den Zeitpunkt für eine Überquerung eines Sondenstartortes vorherzusagen, damit eine zweite Sonde die Luftmasse beproben kann. Hieraus kann der chemische Verlust von Ozon innerhalb eines Messintervalls direkt nachgewiesen werden. Aus der Vielzahl von Sondenstarts über den Winter ergibt sich dann ein sehr genaues Bild der arktischen Ozonchemie im Vortex.

Mit Hilfe des TRACER-Verfahren wird die zeitliche Entwicklung korrelierter Volumenmischungsverhältnisse von Ozon und chemisch inerten, langlebigen Gasen (Tracer) wie Distickstoffoxid ( $\text{N}_2\text{O}$ ) und Methan ( $\text{CH}_4$ ) verfolgt. Die Tracer bestimmen das dynamische Verhalten des Vortex und man erhält so ein Bild vom chemischen Verlust.

Die Vortexmittelungstechnik bestimmt neben einem vortexgemittelten Ozonprofil auch Heizraten, die mit Hilfe von Strahlungstransportmodellen gewonnen werden, und damit das diabatische Absinken von Luftmassen und die daraus folgende Erhöhung des Ozons in einer Schicht. Zu diesem Verfahren ist auch FUDD zu zählen.

Die Temperaturen waren 2000 sehr lang so tief wie noch nie in der Zeit seit 1980 (Braathen, 2001). Seit Mitte November gab es konstant Gebiete mit Temperaturen unterhalb 195 K in Höhen von 475 K potentieller Temperatur. Diese extrem kalte Periode reichte bis Anfang März. Dabei wurde ein Absinken der Kaltgebiete von etwa 550 K zur Jahreswende 1999/2000 bis auf etwa 440 K Anfang März festgestellt (Rex et al., 2000). Die Vortexfläche erreichte dabei eine Größe von bis zu  $2,5 \cdot 10^7 \text{ km}^2$ , dass entspricht etwa 10 % der Fläche der Nordhalbkugel<sup>3</sup>

Mitte Februar fielen die Temperaturen für größere Gebiete unter 195 K und stiegen erst mit der allgemeinen Erwärmung Anfang März wieder an. In Abbildung 10.8 sind die Märzmittelwerte von Ozon und Temperatur dargestellt. Der Vortex war relativ stabil zu Beginn des Jahres, begann aber im März auseinander zu brechen. Zudem änderte der Vortex ständig seine Po-

---

<sup>3</sup> Zum Vergleich betrug die Fläche der möglichen PSC-Ausdehnung im südpolaren Vortex im August 1999 bis zu  $3,0 \cdot 10^7 \text{ km}^2$  (12 % der Südhalbkugel).

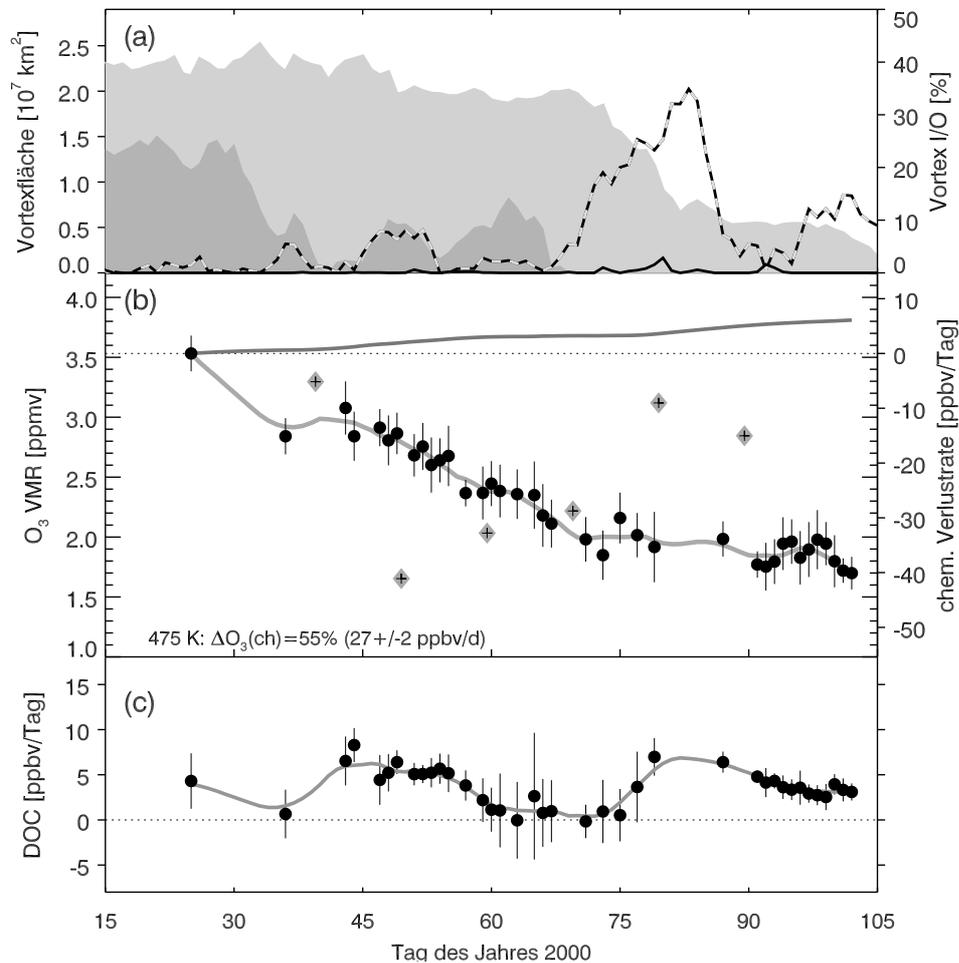


Abbildung 10.9: Chemischer Ozonverlust [ppmv] im Frühjahr 2000 auf der 475 K Isentrope. Darstellung wie in Abbildung 10.5).

sition, sodass im Märzmittel eine Verschmierung der Isolinien der  $PV$  zu sehen ist. Aus diesem Grund kann man auch nicht einfach aus der Ozonkarte den Gesamtverlust des Ozons abschätzen. Ende März ist der Vortex auf etwa ein Viertel seiner maximalen Größe zusammengeschrumpft. Santee et al. (2000) vermuten einen Zufluss von Luft von außerhalb in den Vortex, der sich nach den RDF-Berechnungen in Abbildung 10.9(a) nicht bestätigen lässt, zumindest nicht für 475 K. Es gab zwar viele Perioden, wo Luftmassen vom Vortex abgestreift wurden, aber selbst als sich der Vortex Mitte März auflöste, blieb der Restvortex noch sehr undurchlässig für Luft von außerhalb.

Die  $\text{HNO}_3$ -Menge war bis Mitte März im Vortex abgesunken, was in erster Linie mit einer stärkeren Photolyse korreliert ist. Die Denitrifizierung hat ebenso zu einer andauernden  $\text{HNO}_3$ -Absenkung beigetragen und war teilweise für den starken Ozonabbau mit verantwortlich (Braathen, 2001). Eine Chlor-Aktivierung war Ende März jedoch nicht mehr vorhanden. Im Vergleich zu den ebenfalls kalten Wintern 1996 und 1997, wo die ClO-Anreicherung bis in Höhen von etwa 650 K reichte, war die ClO-Schicht in 2000 unter etwa 475 K abgesunken. Das hat Auswirkungen auf den von GOME gemessenen Ozonabbau, wie sich in dem Vergleich von FURM mit Ozonsonden-Messungen in Abschnitt 10.2 zeigt.

Abbildung 10.9(b) zeigt eine Zeitserie des von GOME beobachteten Ozon-VMR im Jahr 2000 auf 475 K. Zwischen Mitte Februar (Tag 43) und Anfang April (Tag 97) fiel das VMR von 2,8 ppmv auf 2 ppmv. Der stärkste Verlust trat bis Mitte März auf. Addiert man das durch diabatisches Absinken erhöhte Ozon, so findet man einen chemischen Gesamtverlust in dieser Schicht von 1 ppmv. Vor dieser Periode wurde der Randbereich des Vortex bereits einmal mittels von sechs Ozonprofilen beobachtet. Am 25. Januar (Tag 25) hat ein Ozonminiloch über Nordengland und Nordsee den Vortexrand aus diesem Gebiet verdrängt und es kam zu einer Ausdehnung in Richtung Russland. Zudem hat GOME an diesem Tag mit kleinerer Scanbreite in dem Orbit über dieses Gebiet gemessen, wodurch es keinen Überlapp des FURM-Pixels mit dem Vortexrand gab. Nimmt man diesen Punkt mit 3,55 ppmv hinzu, der mit Sondenmessungen in dieser Zeit gut übereinstimmt, so findet man einen chemischen Ozonverlust von 1,8 ppmv. Dies ergibt eine mittlere Abbaurate von 32 ppbv/Tag (Tag 43-97: 18 ppbv/Tag; Tag 43-78: 29 ppbv/Tag) und eine maximale Abbaurate von 41 ppbv/Tag (Tag 48-72).

Im Februar 2000 machte MLS noch einmal Messungen von  $\text{O}_3$ , ClO und  $\text{HNO}_3$  auf der Tagesseite nördlich  $50^\circ$  Breite. Allerdings konnte MLS im Februar nicht mehr als die Hälfte des Vortex sehen und Ende März nicht bis zum Pol sehen. Die Präzision einer MLS-Einzelmessung von Ozon liegt bei etwa 0,3 ppmv, bei Mittelwerten bei einem Zehntel davon. Anfang Februar 2000 waren die Temperaturen auf 475 K bereits seit zwei Monaten durchgängig unterhalb der PSC-Wachstumstemperatur (siehe Abbildung 10.3 unten rechts). Die MLS-Daten zu diesem Zeitpunkt zeigen Hinweise auf einen gasphasenbasierten  $\text{HNO}_3$ -Abbau in der Nähe beziehungsweise abwind der

Tieftemperaturregion zwischen Grönland und Skandinavien. Die Existenz von PSC ist hier also anzunehmen. Konsistent in diesem Zusammenhang sind die hohen Werte von ClO östlich beziehungsweise leewärts der Tieftemperaturregion in sonnenbeschienenen Gebieten, die ebenfalls von MLS gemessen wurden (Santee et al., 2000).

Messungen des MLS-Instruments zeigen eine starke Denitrifizierung des inneren Vortex Anfang Februar in Höhen unterhalb von 550 K im Vergleich zu anderen Jahren. Das Maximum der Ozonverluste der MLS-Messungen liegt bei 465 K, die Ozonabnahme liegt bei 40 ppbv/Tag für Februar und ist etwa halb so groß für den gesamten Zeitraum (12.2.: 2,9 ppmv auf 465 K, 27.3.: 2,6 ppmv). Allerdings stehen Anfang Februar nur wenige Messpunkte bei MLS ( $< 40$ ) zur Verfügung, erst Ende März liegt die Zahl bei etwa 75 pro Tag (Santee et al., 2000). Diese Werte decken sich mit den FUDD-Berechnungen, die Mitte Februar ein Ozongehalt von etwa 3 ppmv auf 475 K anzeigen.

Gao et al. (2001) verwenden in situ Ozonmessungen, die an Bord des NASA ER-2 Flugzeuges in der unteren Stratosphäre (47–70 hPa) gemacht wurden. Sie finden für die Periode von Ende Februar bis Mitte März Abbauraten von 43–63 ppbv/Tag in Abhängigkeit vom Grad der Denitrifizierung. Aus den Messungen geht ebenfalls eine starke Denitrifizierung des arktischen Vortex 2000 hervor, welche die Ozonverluste maßgeblich steuert.

Messungen von ASUR (Bremer et al., 2001) zeigen eine Abbaurate von  $19 \pm 5$  ppbv für den Zeitraum Januar bis März 2000, was einen akkumulierten Ozonverlust von  $1,1 \pm 0,1$  ppmv für die 470 K Höhe ergibt. Dies ist etwas weniger, als sich aus den GOME-Messungen ergibt.

Abbildung 10.10 zeigt die Ozonverteilung für die untere und mittlere Stratosphäre zu Beginn der Vortexpaltung Mitte März 2000. In der unteren Stratosphäre hat sich bereits ein Teil des Vortex in Richtung Kamchatka abgespalten und der restliche Vortex ist über dem Pol stark eingeschnürt mit Auslegern über dem Ural und der Hudsonbay. Die Einschnürung ist auch in der höheren Schicht um 675 K zu sehen. Innerhalb des Vortex ist das Ozon schon weitgehend reduziert, jedoch ist der Abbau nicht gleichmäßig über den Vortex verteilt, sondern es existieren Zentren stärkeren Abbaus, die über Nordskandinavien und Nordamerika liegen.

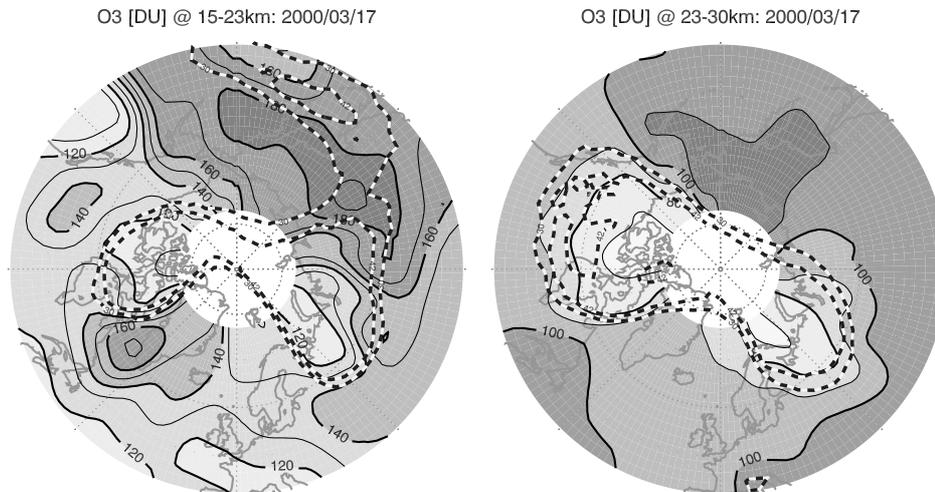


Abbildung 10.10: Schichtozon [DU] vom 17. März 2000 für 15–23 km (links) und 23–30 km (rechts). Die Kante des polaren Vortex ist als schwarz-weiße Linie für den jeweiligen Höhenabschnitt bei 475 K und 675 K dargestellt.

### 10.1.2 Die warme Stratosphäre 1998 und 1999

Die Winter 1997/98 und 1998/99 waren relativ warm. Die Flächen von Temperaturen unter 195 K waren im Vergleich zu den kalten Wintern 1995/96 und 1996/97 nicht einmal halb so groß und die Anzahl der kalten Tage lagen mit 65 beziehungsweise 28 Tagen auch deutlich unter der anderer Winter. Die dynamischen Aktivitäten durch diabatisches Absinken in der warmen Stratosphäre führten zu einer starken Erhöhung der Ozonschicht über den Polen (siehe Abbildung 9.4).

Der Vortex bildete sich Mitte November 1997 bereits sehr früh. Er wurde Anfang Januar durch stratosphärische Erwärmungen gestört. In dieser Zeit wurden die höchsten Temperaturen in der Stratosphäre bis in Höhen von 675 K während der Jahre 1995–2000 gefunden. Danach gab es von Ende Januar bis Anfang März einige Kälteperioden mit Temperaturen unter 195 K. Anfang April brach der Vortex dann zusammen. Die RDF-Berechnungen zeigen eine relativ ruhige Periode, die von Anfang Februar bis Mitte März ging, wo der Zusammenbruch des Vortex begann. So ist der chemische Ozonverlust nicht sehr ausgeprägt und auf eine kurze Periode von Mitte bis Ende Februar in Folge tiefer Temperaturen und der damit verbundenen heterogenen Chlorchemie beschränkt.

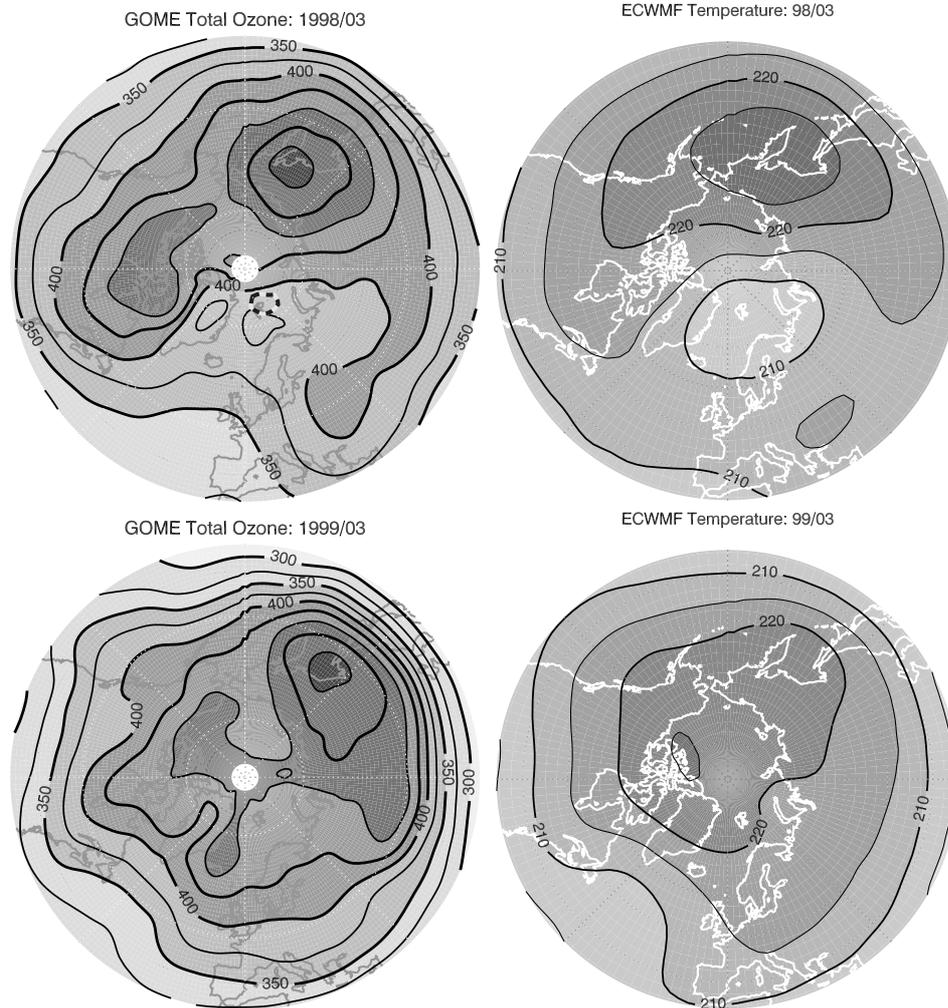


Abbildung 10.11: GOME Ozonmonatsmittel 1998 (oben links) und 1999 (unten links) und ECMWF Temperaturen auf 475 K (rechts).

Ähnliche Verhältnisse lagen 1998/99 vor. Hier entwickelte sich der Vortex Anfang Dezember und wurde durch ein *Major Warming*<sup>4</sup> von Mitte Dezember bis Anfang Februar nachhaltig gestört. Danach wurde es noch einmal kälter und der Vortex entwickelte sich wieder bis Anfang März, wo der endgültige Zusammenbruch begann. Die FURM-Messungen im Vortex waren somit nur auf wenige Tage in Februar und März beschränkt. Aufgrund des

<sup>4</sup> Plötzliche Erwärmung großer Bereiche der winterlichen polaren Stratosphäre. Der zonal gemittelte Wind in zentraler Richtung drehte dabei seine Richtung und wehte aus Osten in Breiten über 60°N auf 10hPa (Kodera et al., 2000).

schwachen Vortex wurde für die Auswertung die Vortexgrenze auf 32 PVU heruntersetzt (Schulz et al., 2001). Hier zeigen die RDF-Berechnungen einen sehr gestörten Vortex mit relativ starken Austauschprozessen.

Gesamtozon und Temperaturen des Monats März sind für beide Jahre in Abbildung 10.11 zu finden. Der Vortex war im März 1998 bereits stark gestört und 1999 kaum noch existent. Im Vergleich zu den anderen Jahren fallen die hohen Ozonsäulen in der Nordhemisphäre auf. Während es 1998 noch ein Gebiet kalter Temperaturen über Nordskandinavien gab, das mit der Vortexposition übereinstimmte, so war 1999 von allgemein hohen Temperaturen geprägt.

Die Entwicklung des Ozon-VMR für die Jahre 1998 und 1999 sind in Abbildung 10.12 und 10.13 gezeigt. Der chemische Verlust liegt 1998 bei etwa 0,5 ppmv, entsprechend 8 ppbv/Tag. Die Periode der größten Verluste lag Ende Februar (Tag 52), als die Temperaturen noch einmal die Bildung von PSCs zuließen. Diese Ergebnisse decken sich mit Match-Untersuchungen von Schulz et al. (2001), die für den Winter 1998 eine vortexgemittelte Verlustrate von  $10 \pm 6$  ppbv/Tag fanden, sowie mit RAM-Beobachtungen (Langer, 1999), wo ein Ozonverlust von 0,6 ppmv gemessen wurde. Eine zweite Periode relativ starker Ozonabsenkung lag Mitte März (Tag 75) vor. Die Gründe hierfür sind aber nicht chemischer Natur, sondern haben mit Austauschprozessen zwischen Vortex und Umgebung zu tun (siehe Abbildung 10.12(a)).

Sehr hohe Ozon-VMR von etwa 3,7 ppmv sind 1999 im Vergleich zu den anderen Jahren beobachtet worden, was mit Vortexmittelwerten aus Sondendaten gut übereinstimmt (Schulz et al., 2001). Der Vortex war in diesem Jahr extrem instabil, es gab beständig Austauschprozesse über den Vortexrand wie in Abbildung 10.13(a) gezeigt. Der Verlust von etwa 0,3 ppmv, der im Vergleich zum passiven Ozon, das infolge der diabatischen Effekte ansteigt, gemessen wurde, kann also nicht chemischer Natur, sondern eher dynamischer Natur sein. Die Periode um den Tag 60 ist besonders stark durch Einfluss von Luft aus mittleren Breiten gekennzeichnet.

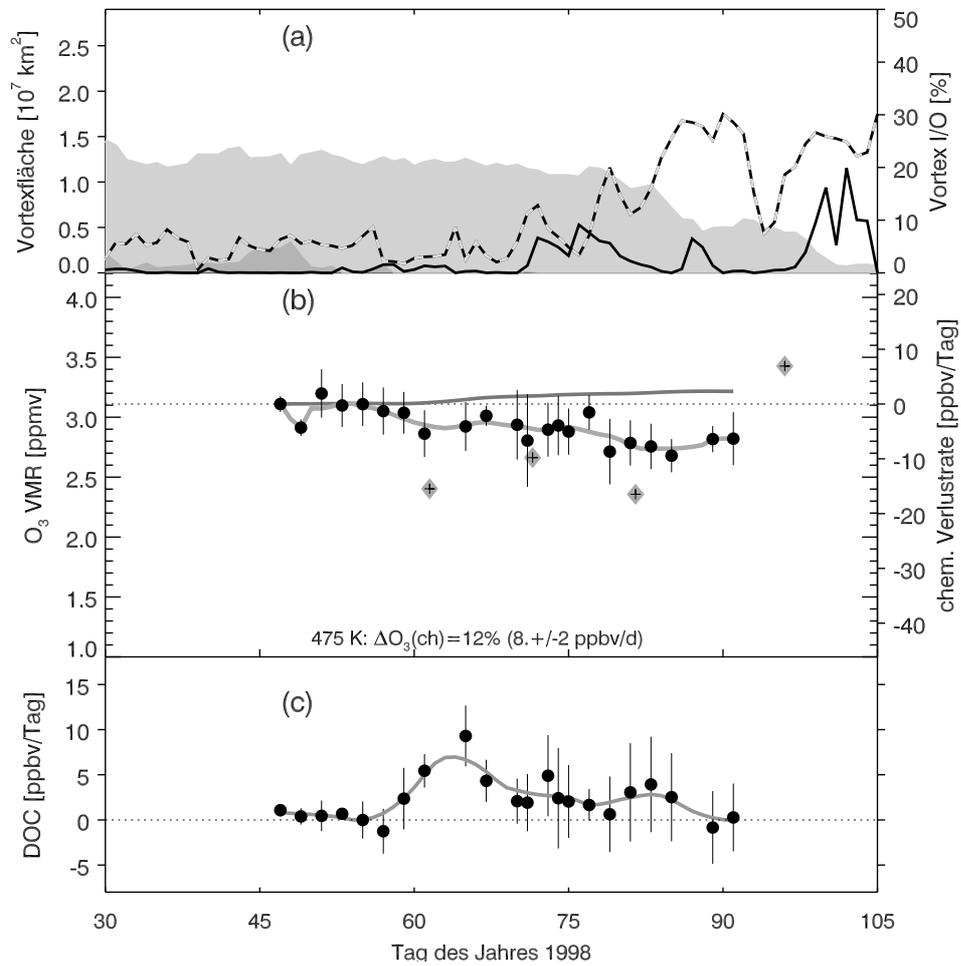


Abbildung 10.12: Darstellung wie in Abbildung 10.5, für den Winter/Frühling 1998 auf der Isentrope 475 K. Die Vortexgrenze ist aufgrund des relativ schwachen Vortex für 1998 auf 36PVU herabgesetzt worden.

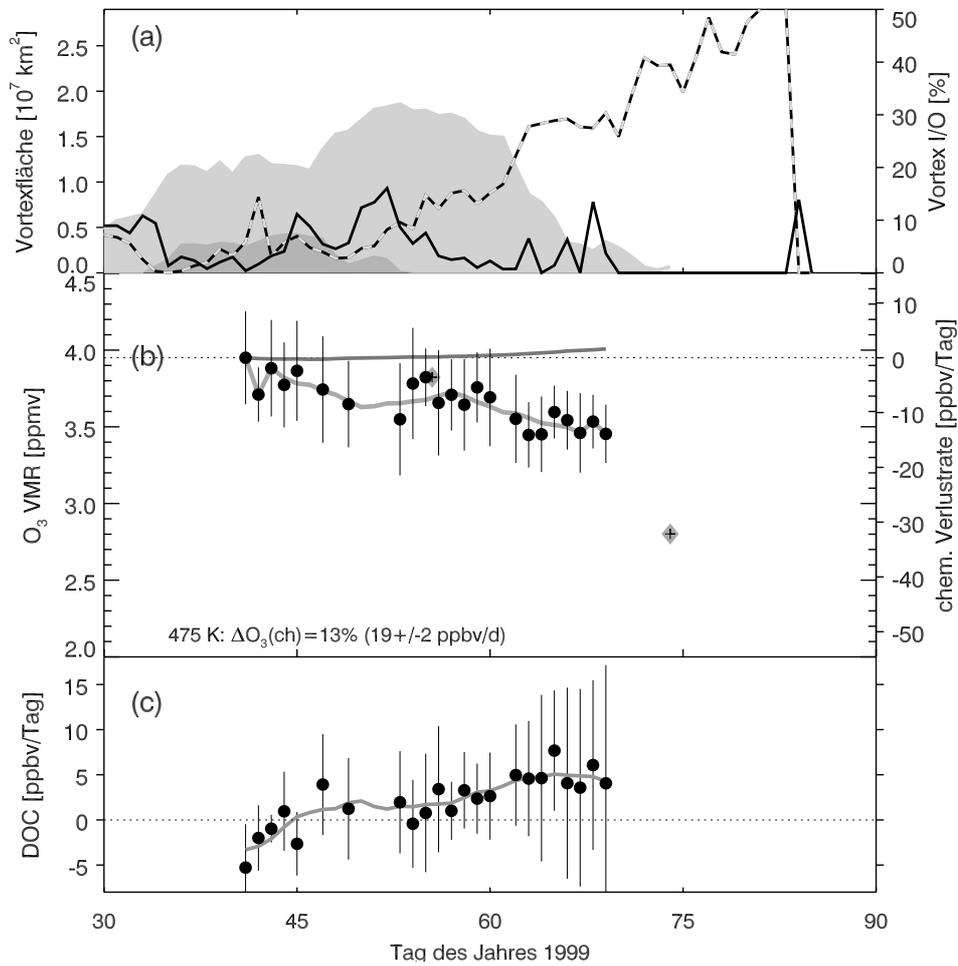


Abbildung 10.13: Darstellung wie in Abbildung 10.5, für den Winter/Frühling 1999 auf der Isentrope 475 K. Die Vortexgrenze ist aufgrund des relativ schwachen Vortex auf 32 PVU herabgesetzt worden. Der Austausch von Luftmassen ist für den Übergang von 36 auf 30 PVU berechnet worden.

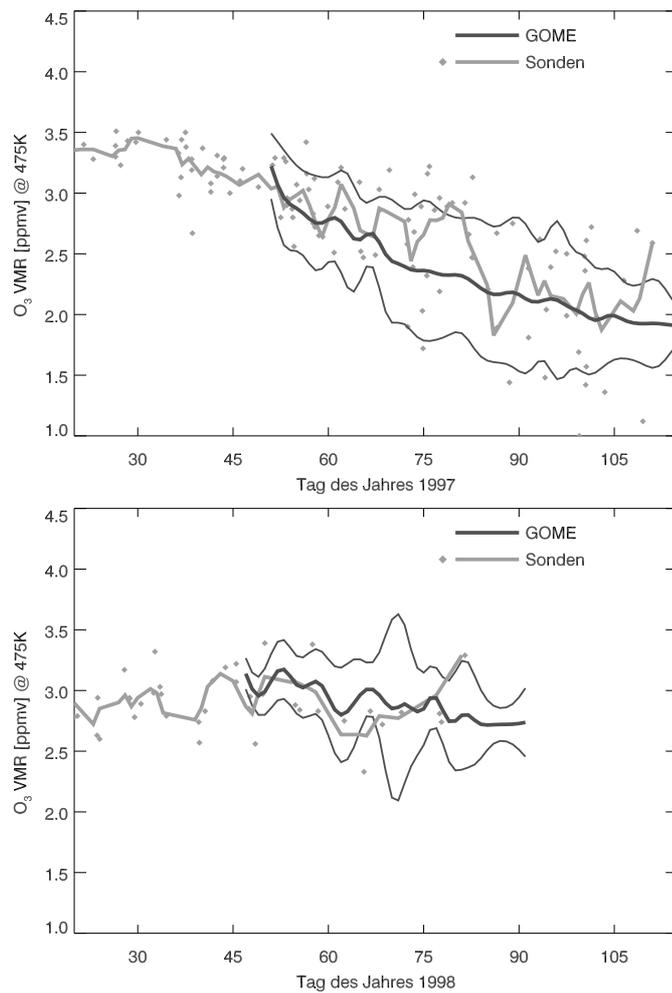


Abbildung 10.14: Vergleich der Ozon-Vortexmittelwerte von GOME und Ozonsonden auf 475 K für die Winterperiode 1997 (oben) und 1998 (unten). Der innere Vortex ist hier jeweils definiert durch die 42 PVU Isolinie. Die Sondenmittelwerte (graue Linie) sind über 3 Tage geglättet worden. Die Einzelmessungen der Ozonsonden sind als graue Rauten dargestellt. Die GOME Mittelwerte und deren  $2\sigma$ -Variation sind als schwarze Linien geplottet. Die Ozonsondendaten stammen von Braathen et al. (2000).

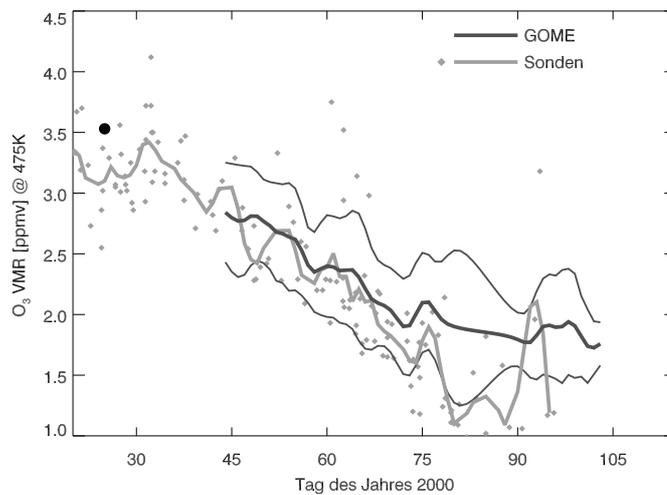


Abbildung 10.15: Wie Abbildung 10.14. Der schwarze Punkt zeigt eine GOME Messung eines Vortexabschnitts am 25. Januar 2000.

## 10.2 Vergleich mit Ozonsonden-Messungen

Ozonsonden sind als in situ Messverfahren für Höhen bis etwa 30 km das beste System bezüglich Höhenauflösung und Messgenauigkeit (Braathen et al., 2000). Sie sind durch die chemische Messmethode nicht von Strahlungsquellen oder Wetterbedingungen abhängig. Allerdings hat die punktuelle in situ Messung auch einen Nachteil bei stark variablen räumlich verteilten Ozonkonzentrationen, eine Mittelung über größere Flächen erfolgt allenfalls über die Menge von Sondenstarts an verschiedenen Orten. GOME-FURM hingegen sieht mit einer Messung des Ozonmaximums bei etwa 475 K ein Luftvolumen mit einer Fläche von  $96000 \text{ km}^2$  und einer Höhe von etwa 7 km. Ein direkter Vergleich einzelner Messungen ist damit schwer möglich. Erst bei Mittelung über große Zeiträume oder Gebiete beziehungsweise Sondenstarts kann man relativ verlässliche Vergleiche durchführen. Der Ozonabbau im polaren Vortex ist in diesem Zusammenhang großflächig genug, um beide Methoden gegeneinander zu stellen.

Der Vergleich von GOME Ozon-VMRs auf 475 K mit Sondenaten ist für die Jahre 1997, 1998 und 2000 in Abbildung 10.14 und 10.15 dargestellt. Die Streuung der Sondenmessungen ist etwa von der gleichen Größenordnung wie die Standardabweichung von GOME. Die Übereinstimmungen

sind für alle Jahre mit Ausnahme der zweiten Märzhälfte 2000 (siehe unten) sehr gut.

<b>FURM und Ozonsonden: 1997-2000</b>						
Jahr	JD(a)	VMR <sub>s</sub> (a)	VMR <sub>G</sub> (a)	JD(e)	VMR <sub>s</sub> (e)	VMR <sub>G</sub> (e)
1997	49	3,1±0,2	3,2±0,2	110	2,0±0,5	1,9±0,2
1997 <sup>k</sup>	49	3,2±0,2	3,2±0,2	100	2,3±0,2	2,1±0,2
1998	49	3,1±0,2	3,1±0,2	80	2,8±0,1	2,7±0,2
1999	44	4,0±0,2	4,2±0,2	60	3,7±0,1	3,5±0,2
2000	45	3,0±0,2	3,0±0,2	75	1,4±0,2	1,9±0,3
1997 <sup>+</sup>	49	4,1±0,2	4,3±0,3	100	3,2±0,2	3,1±0,2
1997 <sup>-</sup>	49	3,7±0,2	4,0±0,3	100	3,2±0,2	3,1±0,2
1997 <sup>r</sup>	49	3,0±0,1	3,2±0,2	116	1,6±0,1	1,8±0,2

Tabelle 10.2: Vergleich von Vortexgemittelter FURMResultate mit Ozonsondendaten für die 475 K und 550 K Isentropen für die Jahre 1997-2000. Tabelliert sind die Volumenmischungsverhältnisse im Vortex auf 475 K zu Beginn (a) und Ende (e) der Messperiode für GOME (VMR<sub>G</sub>) und für Sonden (VMR<sub>s</sub>) (Braathen et al., 2000), sowie die julianischen Tage JD. Für 1997 sind zusätzlich die Mittelwerte von Ozonsonden bestimmt von Knudsen et al. (1998b) dargestellt (1997<sup>k</sup>). In den vorletzten zwei Zeilen der Tabelle sind Werte für 1997 von Knudsen et al. (1998b) für die 550 K Isentrope mit GOME (+ = mit diabatischer Kühlung, - = ohne Kühlung) verglichen worden. Das mit *r* gekennzeichnete Jahr 1997 gibt Mikrowellen-Beobachtungen des RAM-Instruments in Ny-Ålesund auf 475 K wieder (Sinnhuber et al., 1998).

In Tabelle 10.2 sind die Vergleiche zusammengefasst. Für die Messzeiträume der Frühjahre 1997 bis 2000 sind die Übereinstimmungen zwischen den GOME-Ozonprofilwerten und Sondenmessungen in der Höhe von 475 K sehr gut. Im Rahmen der vortexgegebenen Varianzen ( $1\sigma$ ) werden mit beiden Methoden gleiche Volumenmischungsverhältnisse zu Beginn und Ende des Vergleichszeitraums gemessen. Für 1997 gibt es von Knudsen et al. (1998b) Untersuchungen des Ozonabbaus im arktischen Vortex für Höhen zwischen 350 und 550 K (13–22 km) aufgrund von Ozonsondendaten. Hierbei wurden auch die diabatischen Heizraten entlang von Trajektorien bestimmt, um das Absinken der Luftmassen im Vortex berechnen zu kön-

nen (siehe auch Abschnitt 6). So kann zwischen dem virtuellen, aufaddierten VMR durch diabatische Prozesse und den reinen Mittelwerten differenziert werden. Das geschieht in ähnlicher Weise im FUDD-Algorithmus, ein direkter Vergleich ist deshalb möglich. In der Tabelle 10.2 sind im mit den Zeichen k, + und - markierten Jahr 1997 die Werte von Knudsen et al. (1998b) mit den FUDD-Analysen mit und ohne diabatisches Absinken verglichen worden. Die Übereinstimmung auf der 550 K Isentropen sind innerhalb der Varianzen sowohl für die reinen VMR als auch für die um die diabatische Effekte ergänzten VMR sehr gut.

Zu bemerken ist, dass der diabatische Anstieg des Ozon in FUDD nicht mit RDF-Rechnungen ermittelt wurde, die ein Luftpaket in der Zeit auch über das Absinken verfolgen. Für jedes FURM-Pixel und jeden Messtag wurde stattdessen eine Heizrate berechnet und dann über den Vortex gemittelt. Trotz der unterschiedlichen Methoden sind die Verläufe für 475 K und 550 K gleich. Auf 475 K wird kein nennenswertes Absinken im Vergleichszeitraum festgestellt, während auf 550 K der diabatische Unterschied etwa  $0,4 \text{ ppmv}$  in beiden Methoden beträgt. Das ist nun keine Validation der FUDD-Heizraten, aber ein Hinweis für die Richtigkeit der Annahmen. In diesem Zusammenhang sei der Beitrag von Schulz et al. (2000) erwähnt, wo mit Hilfe der Match-Methode die Ozonverlusten 1997 im Vortex bestimmt wurden. Sie berechnen für 475 K einen Ozongesamtverlust von  $0,9 \pm 0,2 \text{ ppmv}$  im Vergleich zu  $1,2 \text{ ppmv}$  bei Knudsen (GOME:  $1,3 \pm 0,2 \text{ ppmv}$ ). Diese Differenzen sind durch Unterschiede in den Heizraten bedingt, die bei Schulz aus SLIMCAT-Rechnungen stammen, welche mit Hilfe von klimatologischen Ozonprofilen gewonnen wurden (Chipperfield, 1999). Hier unterschätzt SLIMCAT das Absinken.

Das vom IUP Bremen betriebene RAM, welches auf Ny-Ålesund stationiert ist und lokal Ozonprofilauswertungen im Mikrowellenbereich möglich macht, hat für 1997 Mitte Februar etwa  $3,0 \pm 0,2 \text{ ppmv}$  auf 475 K gemessen und am Ende der Vergleichsperiode etwa  $1,6 \pm 0,2 \text{ ppmv}$  (Sinnhuber, 1999). Innerhalb der Varianzen stimmen die Messergebnisse aller drei Verfahren für 1997 gut überein.

Im Winter 2000 unterscheiden sich die gemessenen Ozonmischungsverhältnisse zwischen Sonden und GOME relativ klar ausserhalb der gegebenen Varianzen am Ende der Messperiode. Dies liegt an dem in der Höhe nach oben begrenzten Ozonabbau, der zudem auf einen Bereich von etwa

1–2 km beschränkt ist (Braathen, 2001). MLS-Daten zeigen beispielsweise den Kern des aktiven Chlors in Höhen unter 520 K für Mitte Februar. Das FURM-Verfahren lässt aufgrund einer Höhenauflösung von 6–8 km eine eindeutige Zuordnung auf eine Isentropen-Fläche nicht zu, vielmehr findet eine Mischung aus Schichten darüber und darunter statt. So kann ein in der Höhe begrenzter Abbau durch das Verfahren nicht aufgelöst werden. Zudem kann eine horizontale Scherung des Vortex in höheren Schichten Luftmassen mit hohen Ozon VMRs von außerhalb des Vortex in die vertikale Säule bringen. Dies führt durch die GOME Auflösung ebenfalls zu einer Erhöhung des VMR (Eichmann et al., 2001). Ein weiterer Aspekt, der nicht berücksichtigt wird, ist die Messgeometrie von GOME. GOME schaut zwar in den NADIR, jedoch läuft der Sonnenstrahl gerade in Polnähe über weite Wege quer durch die Atmosphäre. Je höher der Sonnenzenitwinkel ist, um so weiter liegt das eigentliche Zentrum der Absorption südlich des Beobachtungspunkts. Hier kann gerade im Randbereich des Vortex ungewollt auch Luft von außerhalb mit beprobt worden sein. Dies kann wiederum zu einer Erhöhung des Ozon VMR führen. Dieser Effekt wirkt sich um so stärker aus, je tiefer die beobachtete Schicht liegt.

### 10.3 Vergleiche mit dem Chemie-Transportmodell SLIMCAT

Das *Single Layer Isentropic Model for Chemistry and Transport* SLIMCAT ist ein dreidimensionales Chemie-Transportmodell (Chipperfield, 1996). Es berechnet Spurenstoffkonzentrationen auf 24 Isentropen zwischen 330 K und 3000 K, was einer Höhenauflösung von etwa 1 km in der unteren Stratosphäre entspricht. SLIMCAT verwendet die analysierten Temperatur- und horizontalen Windfelder aus UKMO-Analysen (Swinbank und O'Neill, 1994) als Antrieb. Der diabatische vertikale Transport wird aus Berechnungen von Heizraten mit Hilfe des Strahlungstransportmodells MIDRAD (Shine, 1987) bestimmt.

SLIMCAT rechnet in zwei Auflösungsmoden. Der langjährige Lauf, der im Oktober 1991 initialisiert wurde, wird in einer geringeren horizontalen Auflösung ( $5^\circ \times 7,5^\circ$ ) betrieben. Er ist an die reale meteorologische Situa-

tion gebunden und hat geringe Probleme mit der Initialisierung, da dies nur einmal geschieht. Beim saisonalen Modus ( $2,5^\circ \times 3,75^\circ$ ) werden Startwerte durch Messungen von Spurenstoffen des UARS-Satelliten und aufgrund dem langjährigen Laufs vorgegeben und der Lauf Ende November gestartet. SLIMCAT beinhaltet ein Reaktionsschema für heterogene Reaktionen, die auf der Oberfläche von PSC Partikeln stattfinden und eine einfache Parametrisierung zur Bestimmung der Sedimentation von PSC Teilchen aufgrund starker Denitrifizierungsprozesse (Chipperfield und Pyle, 1998; Waibel et al., 1999).

Zusätzlich wird das passive Ozon als Tracer für diabatische Vorgänge in SLIMCAT mitberechnet, so dass der chemische Ozonverlust als Differenz von passivem Tracer und modelliertem Ozon ermittelt werden kann. Passiv bedeutet hier, dass während des Modelllaufs das Ozon ohne chemische Reaktionen mitgeführt wird, um so die dynamischen Effekte herauszuarbeiten.

<b>GOME/SLIMCAT Ozonabbau im Vortex (475 K)</b>						
Jahr	Zeitraum	Tage	TV <sub>G</sub>	TV <sub>S</sub>	VPT <sub>G</sub>	VPT <sub>S</sub>
1997	18.2 - 6.5	35	1,5	0,8	19	11
1998	18.2 - 1.4	19	0,3	0,2	6	7
1999	10.2 - 1.3	12	0,4	0,3	17	14
2000	12.2 - 27.3	30	1,1	1,3	23	25

Tabelle 10.3: Übersicht über den Ozonabbau im nordpolaren Vortex auf der 475 K Isentrope und Vergleich mit SLIMCAT-Modelldaten. In den Spalten stehen Jahr, Periode, Anzahl der Tage, an denen GOME Ozonprofilauswertungen zur Verfügung stehen, Ozongesamtverlust TV<sub>G</sub> von GOME und TV<sub>S</sub> [ppmv] von SLIMCAT und die Ozonverlustrate VPT<sub>G</sub> beziehungsweise VPT<sub>S</sub> [ppbv/Tag]. Die Werte sind Vortexmittelwerte für eine Vortexgrenze von 38PVU.

Zum Vergleich mit FURM wurden die saisonalen Läufe, die jeweils im November initialisiert werden (Chipperfield und Jones, 1999), verwendet. Die Werte für die chemischen Ozonverluste sind nochmals in Tabelle 10.3 und 10.4 für die zwei Höhen 475 und 550 K zusammengefasst.

In den Abbildungen 10.16 und 10.17 sind die Volumenmischungsverhältnisse für die Höhen 475 und 550 K von FURM und SLIMCAT dargestellt.

GOME/SLIMCAT Ozonabbau im Vortex (550 K)						
Jahr	Zeitraum	Tage	TV <sub>G</sub>	TV <sub>S</sub>	VPT <sub>G</sub>	VPT <sub>S</sub>
1997	18.2.-8.5.	36	1,5	0,6	18	16
1998	18.2.-1.4.	21	0,0	0,3	-1	3
1999	10.2.-28.2.	8	0,1	0,1	8	26
2000	12.2.-27.3.	27	0,7	0,3	14	4

Tabelle 10.4: Vergleich des Ozonabbaus von GOME und SLIMCAT im nordpolaren Vortex auf der 550 K Isentropen. Die Spalten entsprechen Tabelle 10.3.

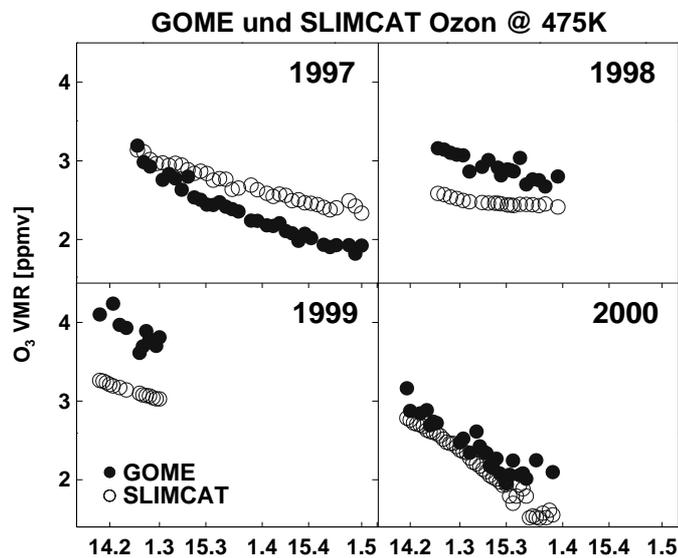


Abbildung 10.16: Vergleich der vortexgemittelten Ozon-Volumenmischungsverhältnisse von FURM und SLIMCAT für die Höhe 475 K in den Perioden Februar bis April 1997–2000.

Man sieht, dass die absoluten Werte der mittleren VMR in kalten Wintern wie in 1997 um bis zu 20% abweichen können. Im Jahr 2000 gibt es eine gute Übereinstimmung für beide Höhen. In den warmen Perioden 1998 und 1999 unterschätzt SLIMCAT das Ozon-VMR dagegen um bis zu 20%. Der Vergleich des chemischen Ozonverlusts ist in Abbildung 10.18 (unten) für 2000 aufgetragen. Eine gute Übereinstimmung sowohl im VMR als auch im chemischen Verlust ist bis Mitte März festzustellen. Später differieren beide

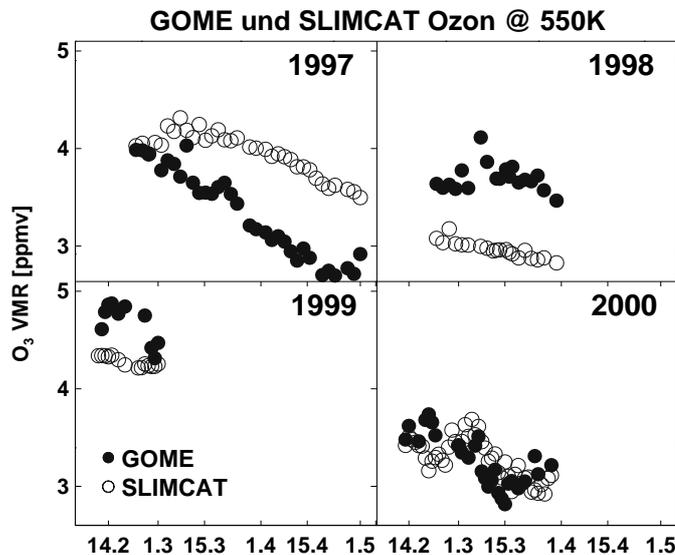


Abbildung 10.17: Vergleich der vortexgemittelten Ozon-Volumenmischungsverhältnisse von FURM und SLIMCAT für die Höhe 550 K in den Perioden Februar bis April 1997–2000.

Größen aufgrund des bereits diskutierten, in der vertikalen Ausdehnung begrenzten, andauernden Ozonabbaus, der von SLIMCAT gut modelliert wird.

Zu bedenken ist, dass Modelle, welche gemessene oder berechnete ClO-Konzentrationen und Reaktionsraten der wichtigsten Reaktionen verwenden, nicht in der Lage sind, den beobachteten Verlust des arktischen Ozons vollständig wiederzugeben. Dies gilt insbesondere für Winter mit schnellen, starken chemischen Ozonverlusten (Becker et al., 2000). Für 2000 hat SLIMCAT die Verhältnisse im Vortex gut wiedergegeben, wie Vergleiche mit anderen Instrumenten zeigen (Braathen, 2001), in anderen kalten Jahren hat SLIMCAT den chemischen Ozonverlust aber unterschätzt (Weber et al., 2000; Sinnhuber et al., 2000). Man nimmt an, dass der Prozess der Denitrifizierung im Modell generell unterschätzt wird. Im Jahr 2000 waren die UKMO Temperaturen aber tief genug, um eine großskalige Denitrifizierung im Modell zu erlauben. Dadurch kann die Chloraktivierung länger bestehen bleiben (Wagner et al., 2001), was zu einem anhaltenden Ozonverlust bis in den März führt (Rex et al., 2000; Eichmann et al., 2001).

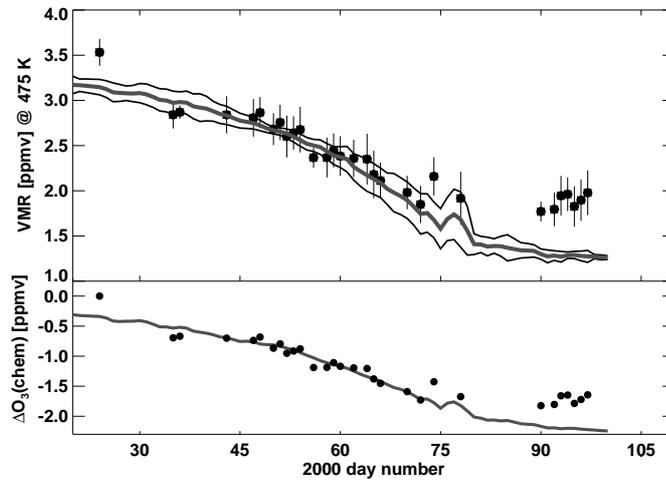


Abbildung 10.18: Vergleich des chemischen Ozonverlusts von FURM und SLIMCAT für 475 K in der Periode Januar bis April 2000. Oben: Die schwarzen Kreise geben die GOME-Ozon-VMRs mit  $1\sigma$ -Fehlerbalken wieder. Die SLIMCAT Ozonmittel und  $1\sigma$ -Streuung sind durch die dicken und dünnen Linien gezeigt. Unten: Der aufaddierte chemische Ozonverlust auf 475 K von GOME (schwarze Kreise) und SLIMCAT (durchgezogene Linie). Der chemische Ozonverlust wird durch Addition des diabatischen Anstiegs auf die Verluste berechnet. Referenzdaten sind bei GOME der 25. Januar und bei SLIMCAT der 1. Dezember 1999. Abbildung entnommen aus Eichmann et al. (2001).

**Teil IV**

# **Zusammenfassung und Ausblick**



## 11 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die spektralen GOME-Messungen des ultravioletten Spektralbereichs genutzt, um die Ozonschicht der Nordhemisphäre insbesondere in der chemisch und dynamisch wichtigen Zeit von Winter und Frühjahr zu charakterisieren. Der Inversionsalgorithmus FURM zur Ableitung von Ozonvertikalverteilungen aus globalen GOME-Messungen, der am Institut für Umweltphysik entwickelt wurde, wurde erstmals auf die atmosphärenphysikalische Fragestellung des chemisch bedingten Ozonabbaus in nordpolaren Regionen angewendet. Zu diesem Zweck ist einerseits der Algorithmus FUDD zur Bestimmung von höhenaufgelösten Mittelwerten von Ozon und diabatischen Heizraten und andererseits ein Trajektorienmodell TANGO zur Bestimmung horizontaler Luftbewegungen entwickelt worden.

Insbesondere in der nördlichen Hemisphäre wurden aufwendige Profilauswertungen in der Zeit von Winter und Frühjahr der Jahre 1997 bis 2000 durchgeführt. Diese Daten wurden für verschiedene Kampagnen wie EuroSOLVE und THESEO 2000 nahezu in Echtzeit generiert und über das Internet publiziert. Mit der Verbesserung des Entwicklungsstands des FURM-Modells, auch als Folge der Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit, wurde die Ozonprofilauswertung aus GOME-Daten für alle Jahre mit Hilfe einer Reprozessierung auf einen einheitlichen Stand gebracht. Für fast jeden zweiten Tag wurden auf semi-globaler Basis ab  $40^{\circ}\text{N}$  Ozonprofile aus GOME-Daten berechnet. Dass der Datensatz begrenzt ist, liegt an der Rechenkapazität, die für die Berechnung der Ozonprofile aufgewendet werden muss. Eine vollständige Auswertung aller zur Verfügung stehenden Daten des GOME-Instruments zur Ableitung von Ozonprofilen ist gegenwärtig nicht möglich. Hierfür muss der Algorithmus in seiner Ausführungsgeschwindigkeit weiter optimiert werden.

Zur Bestimmung gemittelter Ozonprofile und den zugehörigen diabati-

schen Ozonerhöhungen für Schichten unterhalb des VMR-Ozonmaximums wurde das Auswertungsmodell FUDD entwickelt, mit Hilfe dessen eine Verbindung der UKMO-Daten von Temperatur und potentieller Vorticity, der FURM-Ozonprofile und dem Strahlungstransportmodell MIDRAD zur Berechnung von Heizraten geschaffen wurde.

Der Entwicklung des Trajektorienmodells TANGO zur Verfolgung von Luftmassenwegen in der Stratosphäre in Zusammenarbeit mit J. Trentmann und B.-M. Sinnhuber, sowie der Entwicklung des RDF-Teils von TANGO brachte die Möglichkeit, dynamische Effekte wie den Austausch von Luftmassen über den Vortexrand abzuschätzen und Perioden zu bestimmen, in denen der chemische Ozonverlust von horizontalen Prozessen unbeeinflusst ist.

Die Bestimmung chemischer Ozonverluste in den Monaten Januar bis April der Jahre 1997 bis 2000 wurde in der stratosphärischen Schicht des Ozonmaximums auf 475 K potentieller Temperatur (etwa 20 km) durchgeführt. In den stratosphärisch kalten Wintern 1997 und 2000, wie ECMWF und UKMO Daten zeigen, wurden starke chemisch bedingte Ozonverluste infolge der tiefen Temperaturen unterhalb 195 K über große Gebiete in der unteren Stratosphäre gemessen. Aufgrund des starken Vortex, der von Wellenbrechungsereignissen insbesondere in 1997 verschont blieb, gab es vergleichsweise wenig Austausch von Luftmassen über den Vortexrand. 1997 wurde insgesamt ein chemischer Ozonverlust von 1,6 ppmv (22 ppbv/Tag) im polaren Vortex berechnet. Die niedrigsten Werte im Ozon-VMR traten 1997 erst sehr spät Anfang Mai auf.

Anfang 2000 konnte der Vortex aufgrund seiner Auslenkung vom Pol bereits sehr früh detektiert werden. Dadurch wurden bereits Ende Januar 3,55 ppmv im Vortex bestimmt. Der chemisch bedingte Verlust wurde zu 1,8 ppmv (32 ppbv/Tag) bis Anfang April bestimmt. Vor der Märzmitte begann der Vortex sich bereits aufzulösen und verlor stark an Ausdehnung. Auf niedrigem Niveau konnte er sich dann noch einmal fangen, bevor er Mitte April endgültig zusammengebrochen ist.

In den warmen Wintern konnte ein signifikanter Ozonverlust nicht gemessen werden. Hinzu kommt, wie die für diese Arbeit entwickelten RDF-Berechnungen der Vortexdichtigkeit zeigen, dass der Vortex nicht völlig abgeschlossen ist, sondern dass für kurze Perioden Luft von außerhalb eingebracht wurde. 1998 gibt es jedoch eine Periode in der zweiten Februarhälfte

mit starken Abbauraten, die chemisch bedingt sind. Insgesamt wurde ein Verlust von 0,5 ppmv (8 ppbv/Tag) gemessen.

1999 ist der Vortexrand stark durchlässig für Luftmassenbewegungen gewesen mit langen Perioden der Einmischung von Luft außerhalb des Vortex. Ein chemischer Verlust ist deshalb nicht sauber abzuschätzen, die 0,3 ppmv Verlust sind hier auch auf dynamische Vorgänge zurückzuführen.

Vergleiche mit Ozonsonden (Vortexmittelung und Match-Methode) und Fernerkundungsverfahren wie RAM, ASUR, MLS und HALOE zeigten eine gute Übereinstimmung sowohl bei den Mittelwerten im Vortex als auch exemplarisch bei der Bestimmung der diabatischen Abstiegsraten. Zudem wurde ein Vergleich mit dem 3d-Chemischen Transportmodell SLIMCAT durchgeführt, um die Genauigkeit der heutigen Modelle abschätzen zu können.

Da GOME ein Messsystem ist, das im optischen Wellenlängenbereich operiert, weist diese Methode, den arktischen Vortex zu untersuchen, Unzulänglichkeiten auf, weil eine volle Abdeckung über das Winterhalbjahr nicht gewährleistet werden kann. Die von der Sonne nicht beschienenen Gebiete können auch nicht detektiert werden. Darüberhinaus gibt das Messverfahren von GOME im Zusammenspiel mit dem FURM-Algorithmus einen maximalen Sonnenzenitwinkel von  $76^\circ$  aufgrund der unterschiedlichen Scanzeiten in den für das Retrieval verwendeten Kanälen 1b und 2 vor. Das verringert die Zeit der möglichen Beobachtung des polaren Vortex zusätzlich. Insofern ist die FURM-Methode zur Bestimmung chemischer Gesamt Ozonverluste im Vortex nicht optimal geeignet, weil es bereits im Januar und Anfang Februar einen chemischen Ozonabbau im Vortex geben kann. Trotzdem zeigen die FURM-Ergebnisse eine gute Übereinstimmung der chemischen Ozonverluste mit anderen Messmethoden im gegebenen zeitlichen Rahmen. Aufgrund der Höhenauflösung gibt es aber auch Perioden, die mit GOME nicht exakt bestimmt werden können, wie es im relativ kleinen Vortex mit starken Ozonverlusten in schmalen vertikalen Schichten Anfang April im Jahr 2000 zu beobachten war. Höherauflösende Instrumente (Ozonsonden) zeigten hier einen um etwa 0,5 ppmv stärkeren Ozonverlust.

Am Beispiel der Ozonminilöcher wurde eine weitere Möglichkeit zur Verwendung von FURM-Ozonprofilen in Synergie mit geophysikalischen Parametern wie Temperatur, potentielle Vorticity und geopotentieller Höhe und vor allem der Tropopausenhöhe aufgeführt. Die Dynamik des Ozonmi-

nilochs wurde mit Hilfe der zur Verfügung stehenden Daten veranschaulicht und gezeigt, dass Ozonminilöcher ein von der Troposphäre verursachtes Phänomen sind, die mit drastischen Tropopausenerhöhungen einhergehen.

Ozontrends konnten um die Gesamtozondaten von GOME ergänzt werden und so Vergleiche mit dem TOMS-Daten durchgeführt werden. Es zeigt sich, dass der stärkste Trend in mittleren bis hohen Breiten in der ersten Jahreshälfte (Nordhalbkugel) zu Zeiten großer dynamischer und chemischer Veränderungen zu finden ist.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Qualität der GOME-Ozonprofilauswertung, in Anbetracht der Schwierigkeiten in der Kalibration des Instruments sowie der großen horizontalen Pixelausmasse und der moderaten vertikalen Auflösung, für Beobachtungen in der Nordhemisphäre ausgezeichnet geeignet ist. Die Anwendung in wissenschaftlichen Studien zur stratosphärischen Ozonchemie und -dynamik ist FURM, wie hier erarbeitet, zeigt gute Ergebnisse.

## 12 Ausblick

Dass die Ozonprofilauswertung mit GOME im Hinblick auf den maximalen Sonnenzenitwinkel limitiert ist, ist ein Nachteil für die vollständige Auswertung in Polargebieten im Winter. Wendet man den Blick aber mittleren und tropischen Breiten zu, so bietet das Verfahren enorme Vorteile bezüglich seiner räumlichen und zeitlichen Abdeckung. Hier geeignete Verfahren zu einer vollständigen Bestimmung der dynamischen und chemischen Einflüsse auf die Ozonschicht zu entwickeln, welche auch Austauschprozesse, wie sie z.B. in Minilochsituationen auftreten können, miteinbeziehen, ist eine Aufgabe, die das Spektrum der Möglichkeiten von GOME in Verbindung mit FURM voll nutzen wird.

Erste Untersuchungen in mittleren Breiten sind vielversprechend (Eichmann et al., 2001). Als Beispiel sind in Abbildung 12.1 FURM-Ergebnisse für 1999/2000 zwischen Anfang November und Mitte April für den Vortexrandbereich von 25 bis 40PVU und für Gebiete außerhalb, dargestellt durch die potentielle Vorticity von 10 bis 25PVU, gezeigt. Man sieht den starken Anstieg in Vortexnähe, der in mittleren Breiten nicht so stark ausfällt. Datenlücken im Dezember sind aufgrund der Polarnacht gegeben. Genaue Analysen über Austauschprozesse in mittleren Breiten können mit dem TANGO-Trajektorienmodell erfolgen.

Gegenwärtig ist jedoch der in dieser Arbeit verwendete Algorithmus FUDD in der Berechnung von Heizraten auf polare Regionen mit bekannter Albedo beschränkt. FUDD kann dahingehend noch verbessert werden, dass eine aktive Bestimmung der Albedo vorgenommen wird, so dass Heizraten auch in mittleren Breiten uneingeschränkt nutzbar sind. Eine Bestimmung von Ozontrends in verschiedenen Höhen der Stratosphäre ist zur Zeit in Betracht der zeitaufwendigen Berechnung der Profile nicht möglich, aber sicherlich in Zukunft wünschenswert, wenn die Zeitreihen lang genug sind. Hierfür muss FURM stark beschleunigt werden.

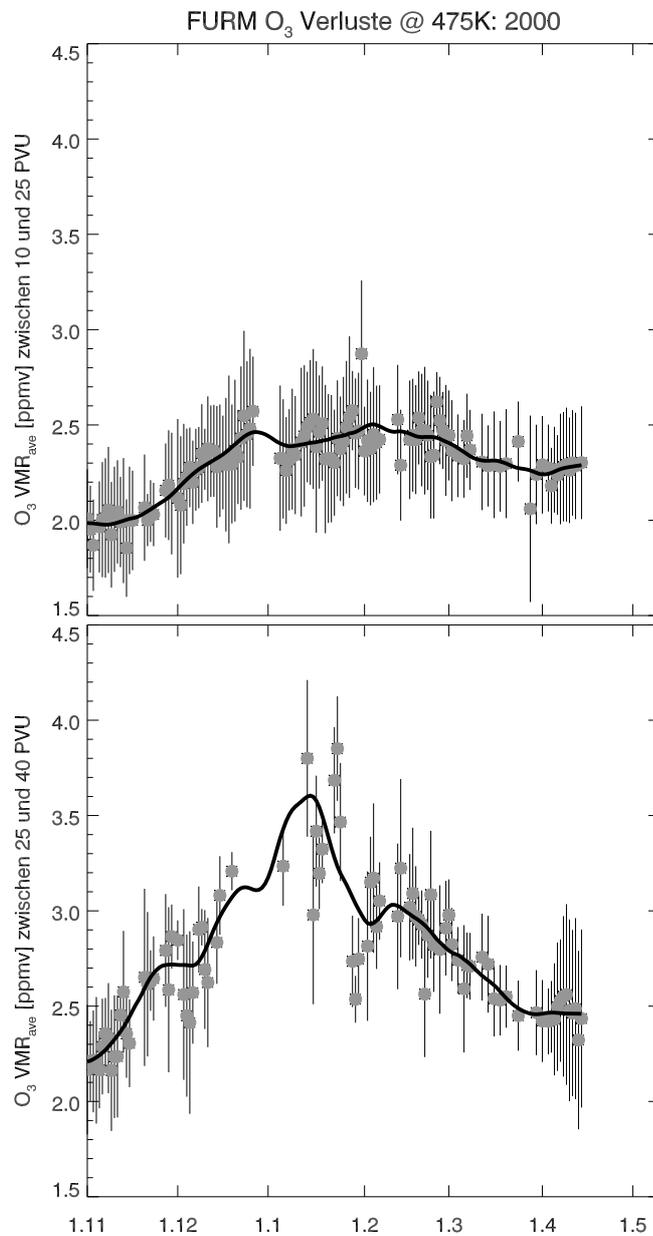


Abbildung 12.1: Ozonvolumenmischungsverhältnis außerhalb des Vortex (oben) und im Randbereich (unten) für den Winter 1999/2000 auf 475 K.

Schließlich ist eine Reihe von GOME-ähnlichen Instrumenten geplant bzw. gebaut wie SCIAMACHY auf ENVISAT und GOME-2 auf METOP-1 bis METOP-3. Die Auswertung von GOME-Ozonprofilen auf glo-

baler Ebene kann verwendet werden, um eine höhenaufgelöste Ozonklimatologie zu erstellen.

Weitere interessante wissenschaftliche Fragestellungen wie eine quantitative Analyse der Korrelation von Tropopausenhöhe und Ozonprofilverteilungen oder die Trendumkehr im Ozonverlust in mittleren Breiten können ebenfalls mit Hilfe von FUDD untersucht werden.



# **Anhang**



## A Das Satellitenexperiment TOMS

Eines der ersten im UV/sichtbaren operierenden satellitengestützten Spektrometer zur globalen Messung der Gesamtozonkonzentration ist das *Total Ozone Mapping Spectrometer* (TOMS), das inzwischen bereits auf vier Satelliten geflogen ist und zur Zeit auf EARTH PROBE seinen Dienst verrichtet. Das erste Spektrometer war auf NIMBUS-7(N7) vom 1. November 1978 bis zum 6. Mai 1993 im Einsatz, um globale Gesamtozonverteilungen bereit zu stellen. Nachfolgend ist auf Meteor 3 vom 22. August 1991 bis 27. Dezember 1994 ein TOMS Instrument geflogen, auf ADEOS vom 1. Oktober 1996 bis 31. Mai 1997 und seit dem 25. Juli 1996 ist TOMS auf EARTH PROBE im Einsatz.

TOMS misst das Gesamtozon in Nadir-Richtung unter Nutzung sechs ultravioletter Kanäle und eines Across-Track Scanspiegels. Das Instrument hat ein quadratisches Field-of-View von 50km am Subsatellitenpunkt. Es besitzt einen Scanwinkel von  $\pm 52^\circ$  und eine Scanbreite von 2739km für eine globale und tägliche Abdeckung. Es macht dabei 35 Messungen alle 8 Sekunden beim Scan von rechts nach links (Krueger, 1995).

Der Auswertungsalgorithmus Version 7 nutzt die unterschiedliche Absorptionsstärke von Ozon bei Wellenlängen im ultravioletten Spektralbereich. Es werden Triplets von Wellenlängen aus dem Messspektrum verwendet, die gegeneinander ins Verhältnis gesetzt werden, um daraus den Ozon-gehalt abzuschätzen: es sind das Triplet A (312,5 nm/331,2 nm/380 nm), B (317,5 nm/331,2 nm/380 nm) und C (331,2 nm/339,8 nm/380 nm).

Vergleiche der TOMS Messungen mit dem Dobson-Netzwerk, einem weltweiten System bodengebundener Spektrometer, zeigen gute Übereinstimmung innerhalb von 1%. Dies gilt jedoch nur für Sonnenzenitwinkel (SZW) unter  $80^\circ$ , darüber überschätzt TOMS mit steigendem SZW das Gesamtozon um bis zu 6%. Weiterhin gibt es eine starke Abhängigkeit bezüglich der Reflektivität. Bei hohen Reflektivitäten ( $>80\%$ ) unterschätzt

TOMS die Gesamtsäule um etwa 5 %. Eine Erklärung hierfür ist, daß Tiefdruckwettersysteme mit bewölkten Bedingungen und hohen Reflektivitäten assoziiert sind. Unter diesen Umständen ist die Tropopause erniedrigt und das TOZ erhöht. So besteht eine Korrelation zwischen hohem Ozon und hoher Reflektivität (McPeters und Labow, 1996).

Die gegrideten Gesamtozonwerte von TOMS sind über das Internet erhältlich (<http://jwocky.gsfc.nasa.gov/>). Sie wurden in Gitterzellen von  $1^\circ$  Breite und  $1,25^\circ$  Länge gemittelt. Das entstehende Datenfeld hat  $180 \times 288$  Einträge und reicht von  $90^\circ\text{S}$  bis  $90^\circ\text{N}$  und  $180^\circ\text{W}$  bis  $180^\circ\text{O}$ . Die Gitterpunkte sind folgendermassen angeordnet:

$$\begin{aligned} LAT_{\text{TOZ}}(i) &= -89,5 - i \times 1,0; i = 0, \dots, 180 \\ LON_{\text{TOZ}}(j) &= -179,375 + i \times 1,25; j = 0, \dots, 288 \\ TOZ(i, j) &: (-89,5; -179,375), (-88,5; \dots, (89,5; 179,375) \quad (\text{A.1}) \end{aligned}$$

## B Meteorologische Datensätze

Um Kenntnis über das Verhalten von Luftmassen und der darin enthaltenen chemisch bedeutenden Spurengase zu erlangen, müssen die physikalischen Parameter der Atmosphäre genau bekannt sein. So sind viele chemischen Reaktionen stark temperaturabhängig und die chemisch prozessierten Stoffe werden horizontal und vertikal advektiert. Globale, höhenaufgelöste Datensätze von Temperatur, Druck, Wind und der potentiellen Wirbelstärke werden in Europa von dem *UK Meteorological Office* (UKMO) und dem *European Center for Medium Range Weather Forecast* (ECMWF) geliefert.

An Bord des *Upper Atmospheric Research Satellite* (UARS), der im September 1991 gestartet wurde, befinden sich Instrumente zur Messung stratosphärischer Temperaturen, Winde und Spurengase. Um die Interpretation der UARS Daten zu unterstützen, wurden zwei korrelative Datenbanken globaler, meteorologischer Analysen entwickelt. Das *U.S. National Meteorological Center* (NMC) produziert tägliche Analysen von Temperatur und geopotentieller Höhe unter Verwendung eines *Objective Analysis* Schemas.

### B.1 Der UKMO Datensatz

Die UKMO Analysen basieren auf der heterogenen Mischung verschiedener operationeller, meteorologischer Beobachtungen. Dies sind Temperaturdatensätze der TIROS-N Serie der NOAA Polarorbiter-Satelliten und Radiosonden-Messungen von Temperatur und Wind. Weiterhin werden flugzeuggestützte Wind- und Temperaturmessungen sowie bodengestützte Messungen von Druckverteilungen mitberücksichtigt. Diese Datensätze werden in ein Datenassimilierungsschema eingebracht und einer Qualitätskontrolle unterworfen. Ein numerisches Modell der Atmosphäre wird mit Hilfe der Messdaten so gesteuert, dass eine möglichst hohe Übereinstimmung zwi-

schen Modell- und Messdaten besteht (Swinbank und O'Neill, 1994; Manney et al., 1996).

Ergebnis der meteorologischen Analysen ist ein dreidimensionales Datenfeld auf den standardisierten 22 UARS-Druckflächen, die vom Erdboden bei 1000hPa bis in die untere Mesosphäre bei 0,316hPa reichen (etwa 0 bis 55 km), wobei  $p(i) = 1000 \times 10^{-i/6}$  ist und  $i$  zwischen 0 bis 21 liegt. Die horizontale Auflösung beträgt  $2,5^\circ$  Breite und  $3,75^\circ$  Länge. Die Windfelder  $W$  sind zusammengesetzt aus der zonalen Windkomponente  $u$  [ $\text{m s}^{-1}$ ] und der meridionalen Komponente  $v$  [ $\text{m s}^{-1}$ ]. Die Gitterpunkte von Breite  $B$  und Länge  $L$  [ $^\circ$ ] liegen bei:

$$\begin{aligned} B_W(i) &= 88,75 - i \times 2,5; i = 0, \dots, 71 \\ L_W(j) &= 1,875 + i \times 3,75; j = 0, \dots, 95 \\ W(i, j) &: (88,75; 1,875), (88,75; 6,625), \dots, (-88,75; 358,125) \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

Die Felder  $P$  von Temperatur  $T$  [K] und geopotentieller Höhe  $z$  [m] liegen ebenfalls auf einem  $2,5^\circ \times 3,75^\circ$  Gitter vor, jedoch befinden sich die Gitterpunkte auf:

$$\begin{aligned} B_P(i) &= 90,0 - i \times 2,5; i = 0, \dots, 72 \\ L_P(j) &= 0,0 + i \times 3,75; j = 0, \dots, 95 \\ P(i, j) &: (90,0; 0,0), (90,0; 3,75), \dots, (-90,0; 356,25) \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

Die Daten sind ab dem 17. Oktober 1991 täglich für jeweils 12 Uhr Greenwich Mean Time (GMT) verfügbar.

## B.2 Der ECMWF Datensatz

Die meteorologischen Datensätze des ECMWF sind über das NADIR Datenzentrum erhältlich, welches 1991 im Zuge der European Arctic Stratospheric Ozone Experiment Kampagne gegründet wurde. Für wissenschaftliche Zwecke werden Druck [hPa], Temperatur [K] und potentielle Vorticity [PVU] auf Isentropenflächen, berechnet vom Dänischen Meteorologischen

Institut (Braathen, 1998), zur Verfügung gestellt. Analysen für die 7 Flächen 350, 380, 400, 435, 475, 550 und 675 K liegen für einen räumlichen Bereich vom Nordpol bis 30 Grad Nord und einen Zeitraum vom 1. November bis 30. April jeweils um 12 UTC (Greenwich Zeitzone) vor. Die Koordinaten des Gitters sind:

$$\begin{aligned} B_P(i) &= 90,0 - i \times 2,5; i = 0, \dots, 24 \\ L_P(j) &= 0,0 + i \times 2,5; j = 0, \dots, 143 \\ P(i, j) &: (90, 0; 0, 0), (90, 0; 2, 5), \dots, (30, 0; 357, 5) \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

Weiterhin sind Datensätze von Temperatur [K], geopotentieller Höhe [Dm], zonalem und meridionalem Wind [ $\text{m s}^{-1}$ ] auf 13 isobaren Standard-schichten von 1000, 850, 700, 500, 400, 300, 200, 150, 100, 70, 50, 30 und 10hPa (etwa 30km) erhältlich. Die Koordinaten des Gitterpunkte sind:

$$\begin{aligned} B_P(i) &= 90,0 - i \times 2,5; i = 0, \dots, 24 \\ L_P(j) &= -177,5 + i \times 2,5; j = 0, \dots, 143 \\ P(i, j) &: (90, 0; -177, 5), (90, 0; -175, 0), \dots, (30, 0; 180, 0) \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Die Datensätze des ECMWF und des UKMO wurden in dieser Arbeit zur Berechnung von Trajektorien und zur Herstellung der meteorologischer Karten verwendet.



## C Glossar

**adiabatisch:** Ohne Verlust oder Zugewinn von Wärme. In adiabatischen Prozessen führt Expansion des Gases zur Abkühlung und Kompression zur Erwärmung.

**Advektion:** Der Prozess des Transports von atmosphärischen Eigenschaften, hauptsächlich sind damit großskalige, horizontale Bewegungen der Atmosphäre gemeint.

**Antizyklon:** Ein atmosphärisches Hochdruckgebiet, in dem Luftmassen im Uhrzeigersinn auf der Nordhalbkugel rotieren.

**Atmosphäre:** Gashölle eines Planeten mit der Beimengung von flüssigen und festen Bestandteilen.

**Barotrope Atmosphäre:** Druck- und Isothermenflächen liegen parallel. Auf einer Druckfläche herrscht überall die gleiche Temperatur. Wird durch unterschiedliche Erwärmung ein horizontales Temperaturfeld aufgeprägt, schneiden sich Isobaren- und Isothermenflächen: Baroklinität.

**Brewer-Dobson circulation:** Ein einfaches Zirkulationsmodell, das aus drei Teilen besteht: Aus der Troposphäre aufsteigenden Luftmassen in den Tropen, polwärtiger Transport in der Stratosphäre und Absinken der Luftmassen in mittleren und hohen Breiten der Stratosphäre.

**Dehydrierung:** Entzug von Wasserdampf aus der Stratosphäre durch Sedimentation großer Teilchen, die Wasser enthalten.

**Denitrifizierung:** Entziehen des reaktiven  $\text{NO}_y$  aus der Stratosphäre durch Aufnahme von  $\text{HNO}_3$  in Wolkenteilchen und deren vertikaler Umverteilung infolge von Sedimentation.

**Denoxifizierung:** reversible Entfernung kurzlebiger Stickoxide ( $\text{NO}_x$ ) durch Umwandlung in das Reservoirgas  $\text{HNO}_3$ .

**diabatisch:** Prozess, bei dem ein Wärmetransfer über die Grenzen des thermodynamischen Systems eintritt.

**Dissoziation:** Die Aufspalten eines Moleküls durch Kollision mit einem anderen Körper oder durch Absorption eines Photons. Dabei entstehen zwei Ionen.

**Dynamik:** (gr. für Kraft) Lehre von den Bewegungsvorgängen infolge der Einwirkung von Kräften.

**Genauigkeit (Accuracy):** Maß, wie dicht das Resultat eines Experiments am wahren Wert liegt.

**Geopotentielle Höhe:** Wird das Geopotential durch den globalen Mittelwert der Schwerebeschleunigung geteilt, dann erhält man die geopotentielle Höhe. Darin ist die Veränderlichkeit der Gravitation mit der Höhe und der geographischen Breite berücksichtigt.

**Geostrophisch:** Gleichgewicht zwischen Druckgradient- und Corioliskraft.

**HALOE:** Halogen Occultation Experiment, an Bord von UARS, misst Spurengase in Okkultation.

**Heterogene Chemie:** Die chemischen Reaktionen laufen unter Beteiligung mehrerer Phasen (gasförmig, flüssig, fest) ab. Dadurch können Reaktionen ablaufen, die in der reinen (homogenen) Gasphase nicht möglich sind oder sehr langsam ablaufen.

**Isentrope:** Linie konstanter Entropie in Raum oder Zeit, gleichbedeutend mit Linie konstanter potentieller Temperatur.

**Konzentration:** Menge (Masse) einer Substanz in einem gegebenen Volumen geteilt durch das Volumen, auch Moleküldichte oder kurz Dichte [Teilchen  $\text{m}^{-3}$ ].

**Klima:** (gr. "sich neigen", früher Neigung der Erdachse gegen die Sonne) Gesamtheit aller atmosphärischen Zustände und Vorgänge in einem hinreichend langen Zeitraum an einem Ort, welche durch den mittleren Zustand sowie durch die auftretenden Schwankungen beschrieben wird.

**Maßeinheiten:** Die gebräuchlichen Einheiten für die Ozonmessung sind: Ozonpartialdruck (ozone partial pressure) [nbar], Ozonpartialdichte (ozone density) [ $\mu\text{g m}^{-3}$ ], Volumenmischungsverhältnis (volume mixing ratio) [ppbv, ppmv], Moleküldichte (number density) [Teilchen  $\text{m}^{-3}$ ], Dobson-Einheit (Dobson Unit) [DU].

**Match:** Messung des Ozonabbaus im Vortex, basierend auf dem koordinierten

nierten Start von Ozonsonden. Der Startzeitpunkt wird aufgrund von Trajektorienvorhersagen geplant.

**Meteorologie:** aus den griechischen Wörtern “meta” (zwischen) und “eora” (Schweben) bzw. “meteoron” (in der Luft) zusammengesetzt, beschäftigt sich vorrangig mit den physikalischen Eigenschaften und Phänomenen der Lufthülle.

**Mol:** Die SI Einheit für die Menge einer Substanz ist das Mol. Die Anzahl der Atome oder Moleküle in 1 mol ist die Avogadro Zahl,  $N_A = 6.022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ .

**Partitionierung:** Die Verteilung von Chlor zwischen aktiven ozonzerstörenden Verbindungen und inerten Reservoiren.

**Planetare Wellen:** Ein atmosphärische Rossby-Wellen mit Wellenlängen von mehr als 10000 km. Führt zu einer ausgeprägte wellenförmigen Deformation des primär zonalen Westwindgürtel, insbesondere in der oberen Troposphäre, wo ein intensiver, meridionaler Austausch von Wärme- und Bewegungsenergie stattfindet. In der Stratosphäre findet insbesondere im Winter ein polwärts und nach oben gerichteter Energie- und Massenfluss statt. Wellenberge und -täler (Rücken/Tröge bzw. Hoch/Tiefdrucksysteme) sind dabei quasi stationär.

**Polarnachtstrom:** entsteht in der unteren bis mittleren Stratosphäre am Rand der Polarnacht infolge der starken Temperaturgradienten, führt zur Bildung des polaren Vortex

**Potentielle Temperatur  $\theta$ :** Die Temperatur, die ein Luftpaket einnehmen würde, dass aus seiner Höhe adiabatische auf Bodendruck komprimiert werden würde.

**Potentielle Vorticity:** (PV) Das Maß der Wirbelstärke wird verwendet, um die atmosphärische Dynamik zu beschreiben. Die PV ist eine Funktion von Druck, Temperatur und Drehimpuls der Luft.

**Präzision (Precision):** Maß, wie genau das Resultat bestimmt werden kann ohne Rücksicht auf den wahren Wert.

**PSC:** (Polar Stratospheric Clouds) Polare Stratosphärenwolken bilden sich bei kalten Temperaturen in beiden polaren Regionen der Stratosphäre. Sie entstehen aus stratosphärischen Schwefelsäuretröpfchen  $\text{H}_2\text{SO}_4$  bei Temperaturen unterhalb etwa 195 K durch Anlagerung von  $\text{HNO}_3$ , bei Temperaturen unter 188 K durch Wasseraufnahme vereisen. Man unterscheidet zwei Typen: PSC-2 sind Eiswolken, PSC-1 bestehen aus einer kleineren

Menge kondensierter Materie, man unterscheidet PSC-1a aus Salpetersäure-Hydraten bestehend ( $\text{NAT} = \text{HNO}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ ) und PSC-1b aus flüssigen  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -Tröpfchen bestehend.

**QBO:** (Quasi Biannual Oscillation) Quasizweijährige Schwingung der Windrichtung über dem Äquator, sie wird erzeugt durch die interne Dynamik der tropischen Wellen. Der zonale Wind wechselt seine Richtung von Ost nach West und zurück ca. alle 26 Monate. Das Phänomen beginnt in der oberen Stratosphäre und setzt sich nach unten nach fort.

**Radiative Forcing:** Änderung der Netto-Irradianz [ $\text{W m}^{-2}$ ] an der Tropopause, nachdem die stratosphärischen Temperaturen im Strahlungsgleichgewicht eingependelt sind. Dabei werden die Temperatur des Bodens und der Troposphäre fixiert bei den ungestörten Werten.

**Rossby-Wellen:** Wichtigster Wellentyp für gross-skalige meteorologische Prozesse. In einer baroklinen Atmosphäre ist die Rossby-Welle eine die potentielle Vorticity erhaltende Bewegung, sie existiert durch isentrope Gradienten der PV in Nord-Süd-Richtung. Rossby-Wellen laufen westwärts mit horizontalen Auslenkungen nach Nord/Süd. Die Phasengeschwindigkeit der Welle kann durch die ostwärts gerichtete mittlere zonale Strömung ausgeglichen werden, sodass die Störungen stationär relativ zur Erdoberfläche sind. Die Gruppengeschwindigkeit für quasistationäre Wellen ist ostwärts gerichtet.

**Schwerewellen:** Entstehen z.B. beim Überströmen von Gebirgen (Leezellen) in der Troposphäre oder an Luftmassengrenzen. Die Rückstellkraft ist der statische Auftrieb. Sie können sich bis in die Stratosphäre fortpflanzen und durch die niedrigere Luftdichte verstärken. Die Wellenlängen sind kleiner als bei den planetaren Wellen.

**Strahlströme:** (Jetstreams) elliptische Hochgeschwindigkeitsröhren in Tropopausennähe ( $>100$  km Breite, 1-4 km Höhe,  $> 30$  m/s), es existiert ein Polarfront- und ein Subtropenstrahlstrom.

**Stratosphäre:** Die Region der Atmosphäre zwischen etwa 12 bis 50 km, wo die Erwärmung durch Ozon zu mit der Höhe steigenden Temperaturen führt.

**Stratosphärenenerwärmung:** Plötzliche Erwärmung der polaren Winter-Stratosphäre. Verglichen werden die zonal gemittelten Temperaturen bei  $40^\circ$  und  $80^\circ$  N auf 50 hPa, ein starker Vortex liegt bei hohen Temperaturgradienten zwischen beiden Zonen vor. Starke Stratosphärenenerwärmungen

zeichnen sich durch ein Zusammenbrechen des Vortex aus, wobei dann in 80° Breite höhere Temperaturen als in 40° vorliegen.

**Systematischer Fehler:** Reproduzierbare Ungenauigkeit, hervorgerufen durch fehlerhafte Kalibration, Equipment oder Technik.

**Tracer:** Langlebige chemische Substanz, die verwendet werden kann, um atmosphärische Luftbewegungen verfolgen zu können.

**Treibhauseffekt:** bewirkt durch Gase wie CO<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>O, die im Kurzwelligen transparent sind und im Langwelligen absorbieren. Führt zu einer Temperaturerhöhung der Atmosphäre, wenn die Gaskonzentration zunimmt.

**Tropopause:** Übergangsregion zwischen Troposphäre und Stratosphäre, wo die Temperatur ein Minimum erreicht.

**Troposphäre:** (trope = Wendung; sphaira = Kugel [griech.]) Unterste Schicht der Atmosphäre, in der sich die Wettererscheinungen abspielen. Ist durch mit der Höhe abnehmende Temperaturen gekennzeichnet und reicht bis zur Stratosphäre in 8-16 km Höhe in Abhängigkeit vom Breitengrad.

**UV-Strahlung:** Licht aus dem Spektralbereich unter 400 nm, dem sichtbaren Spektralbereich, wird eingeteilt in die Bereiche UV-A (320 bis 400 nm), UV-B (280 bis 320 nm) und UV-C (100 bis 280 nm).

**Volumenmischungsverhältnis:** [ppmv, ppbv] Das Vorkommen einer chemischen Spezies in der Atmosphäre kann durch die dimensionslose Zahl des Volumenmischungsverhältnis  $\mu$  mit  $\mu = \frac{n_i}{n_a}$  ausgedrückt werden, wobei  $n_i$  die molare Konzentration der Spezies i und  $n_a$  die gesamte molare Konzentration ist.

**Vertikalsäule:** Anzahl der Moleküle eines bestimmten Gases, also z.B. Ozon oder NO<sub>2</sub>, pro Flächeneinheit in einer imaginären vertikalen Luftsäule. Die physikalische Einheit ist üblicherweise Moleküle/cm<sup>2</sup> oder im Fall von Ozon die Dobsoneneinheit (Dobson Unit) DU (=  $2,686 \times 10^{16}$  Moleküle/cm<sup>2</sup>).

**Zonaler Wind:** Die Komponente des Windfeldes, die parallel zu die Breitengradlinien verläuft, also von West nach Ost und umgekehrt.

**Zufälliger Fehler:** Unbestimmtheit eines Resultats, hervorgerufen durch die finite Präzision einer Messung. Maß von Fluktuationen nach wiederholten Experimenten.



## Literaturverzeichnis

- van der A, R., van Oss, R. und Kelder, H., 1998: Ozone Profile Retrieval from GOME data. In *Proc. SPIE*, Bd. 3495.
- Amanatidis, G. (Hrsg.), 1997: *European Research in the stratosphere - The contribution of EASOE and SESAME to our current understanding of the ozone layer*. Eur 16986 Aufl., Luxembourg: European Commission.
- Andrews, D., Holton, J. und Leovy, C., 1987: *Middle Atmosphere Dynamics*. Orlando, Florida: Academic Press.
- Balzer, W., et al., 1996: *GOME Level 0 to 1 Algorithms Description*. Tech. Rep., Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt (DLR), Deutsches Fernerkundungs Datenzentrum (DFD). ER-TN-DLR-GO-0022.
- Barath, F. T., Chavez, M. C., Cofield, R. E., Flower, D. A., Frerking, M. A., Gram, M. B., Harris, W. M., Holden, J. R., Jarnot, R. F., Kloezeman, W. G., Klose, G. J., Lau, G. K., Loo, M. S., Maddison, B. J., Mattauch, R. J., McKinney, R. P., Peckham, G. E., Pickett, H. M., Siebes, G., Soltis, F. S., Suttie, R. A., Tarsala, J. A., Waters, J. W. und Wilson, W. J., 1993: The Upper Atmosphere Research Satellite Microwave Limb Sounder Instrument. *J. Geophys. Res.*, **98**, 10 751–10 762.
- Barkstrom, B., 1975: A Finite Difference Method of Solving Anisotropic Scattering Problems. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **16**, 725–739.
- Bass, A. und Paur, R., 1985: The ultraviolet cross-sections of ozone: I. The measurements. In *Atmospheric ozone*, Zeferos, C. und Ghazi, A., Hrsg., Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium, Hingham, MA: D. Reidel.
- Bates, D. und Nicolet, M., 1950: The photochemistry of atmospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, **55**, 301.
- Bates, D. R., 1984: Rayleigh scattering by air. *Planet. Space Sci.*, **32**, 785–790.
- Becker, G., Müller, R., McKenna, D., Rex, M., Carslaw, K. und Oelhaf, H.,

- 2000: Ozone loss rates in the arctic stratosphere in the winter 1994/1995: Model simulations underestimate results of the match analysis. *J. Geophys. Res.*, **105**, D12, 15 175–15 184.
- de Beek, R., 1998: *Bestimmung von Ozonvertikalprofilen aus Messungen des Satelliteninstrumentes GOME im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Beekmann, M., Ancellet, G., Megie, G., Smit, H. und Kley, D., 1994: Intercomparison campaign of vertical ozone profiles including electrochemical sondes of ECC and Brewer-Mast type and a ground-based UV-differential absorption lidar. *J. Atmos. Chem.*, **19**, 259–288.
- Bhartia, P., McPeters, R., Mateer, C., Flynn, L. und Wellemeyer, C., 1996: Algorithm for the estimation of vertical ozone profiles from the backscattered ultraviolet technique. *J. Geophys. Res.*, **101**, D13, 18 793–18 806.
- Bithell, M. und Gray, L., 1997: Contour lengthening rates near the tropopause. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 22, 2721–2724.
- Bodeker, G., Scott, J. und Kreher, K., 2000: Global ozone trends in potential vorticity coordinates using TOMS and GOME intercompared against the Dobson network: 1978-1998. *J. Geophys. Res.* Submitted.
- Bovensmann, H., Burrows, J. P., Buchwitz, M., Frerick, J., Noel, S., Rozanov, V., Chance, K. V. und Goede, A. H. P., 1999: SCIAMACHY - Mission Objectives and Measurement Modes. *J. Atmos. Sci.*, **56**, 125–150.
- Braathen, G., 1998: *NADIR News*. NILU, <http://www.nilu.no/nadir>, vol. 6 Aufl..
- Braathen, G., 2001: Improved understanding of stratospheric ozone loss by measurements and modelling contributing to THESEO2000-EuroSOLVE. Final report.
- Braathen, G., Rummkainen, M., Kyrö, E., Schmidt, U., Dahlback, A., Jørgensen, T., Fabian, R., Rudagov, 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.
- Braathen, G., Sinnhuber, B.-M., von der Gathen, P. und Kyrö, E., 2000: Temporal Evolution of ozone in the Arctic vortex from 1988-89 to 1999-2000. In *XIX International Quadrennial Ozone Symposium*.
- Bramstedt, K., 2001: *GOME Ozonprofile: Weiterentwicklung und Validierung*. Doktorarbeit, Universität Bremen.

- Bramstedt, K., Eichmann, K.-U., Weber, M., Rozanov, V., und Burrows, J. P., 2000: GOME ozone profiles: A global validation with HALOE measurements. *Advances in Space Research*. Accepted.
- Brasseur, G., Orlando, J. und Tyndall, G., 1999: *Atmospheric Chemistry and Global Change*. New York, Oxford: Oxford University Press.
- Bremer, H., 2001: *Messungen von dynamischen Tracern und Ozon in der arktischen Stratosphäre: Analyse und Interpretation flugzeuggetragener Submillimeterwellenmessungen*. Doktorarbeit, University of Bremen. In Vorbereitung.
- Bremer, H., von König, M., Kleinböhl, A., Küllmann, H., Künzi, K., Bramstedt, K., Burrows, J., Eichmann, K.-U., Weber, M. und Goede, A., 2001: Ozone depletion observed by ASUR during the Arctic Winter 1999/2000. *J. Geophys. Res.* Accepted.
- Brewer, A., 1949: Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, **75**, 351–363.
- Buchwitz, M., 1997: GOMETRAN++ Version 2.9 User's Guide. Institute of Environmental Physics, University of Bremen. Unveröffentlicht.
- Buchwitz, M., 2000: *Strahlungstransport- und Inversions-Algorithmen zur Ableitung atmosphärischer Spurengasinformationen aus Erdfernerkundungsmessungen in Nadirgeometrie im ultravioletten bis nahinfraroten Spektralbereich am Beispiel SCIAMACHY*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Burrows, J., 1999: Current and future passive remote sensing techniques used to determine atmospheric constituents. In *Approaches to scaling of trace gas fluxes in ecosystems*, Bouwman, A., Hrsg., Bd. 24 of *Developments in Atmospheric Sciences*, Elsevier, 317–347.
- Burrows, J., Richter, A., Dehn, A., Deters, B., Himmelmann, S., Voigt, S. und Orphal, J., 1999a: Atmospheric remote-sensing reference data from GOME: Part 2. Temperature-dependent absorption cross-sections of O<sub>3</sub> in the 231–794 nm range. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **61**, 509–517.
- Burrows, J., Weber, M., Buchwitz, M., Rozanov, V., Ladstädter-Weissenmayer, A., Richter, A., de Beek, R., Hoogen, R., Bramstedt, K., Eichmann, K.-U., Eisinger, M. und Perner, D., 1999b: The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission Concept and First Scientific

- Results. *J. Atmos. Sci.*, **56**, 151–175.
- Chance, K., Burrows, J., D. Perner und Schneider, W., 1997: Satellite measurements of atmospheric ozone profiles, including tropospheric ozone, from ultraviolet/visible measurements in the nadir geometry: a potential method to retrieve tropospheric ozone. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **57**, 4, 467–476.
- Chandrasekhar, S., 1960: *Radiative Transfer*. New York: Dover Publications Inc.
- Chapman, S., 1930: On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere. *Philos. Mag.*, **10**, 369.
- Chen, P., 1994: The permeability of the Antarctic vortex edge. *J. Geophys. Res.*, **99**, D10, 20 563–20 571.
- Chen, P., 1995: Isentropic cross-tropopause mass exchange in the extratropics. *J. Geophys. Res.*, **100**, D8, 16 661–17 773.
- Chipperfield, M., 1996: *The SLIMCAT Offline Transport Model*. Tech. Rep., Centre for Atmospheric Science, University of Cambridge.
- Chipperfield, M., 1999: Multiannual simulations with a three-dimensional chemical transport model. *J. Geophys. Res.*, **104**, D1, 1781–1805.
- Chipperfield, M. und Jones, R., 1999: Relative Influences of atmospheric chemistry and transport on Arctic ozone trends. *Nature*, **400**, 551–554.
- Chipperfield, M. und Pyle, J., 1998: Model sensitivity studies of Arctic ozone depletion. *J. Geophys. Res.*, **103**, D1, 28 389–28 403.
- Chu, W., McCormick, M., Lenoble, J., Brogniez, C. und Pruvost, P., 1989: SAGE II Inversion Algorithm. *J. Geophys. Res.*, **94**, 8339–8351.
- Cogley, A. und Borucki, W., 1976: Exponential approximation for daily average solar heating or photolysis. *J. Atmos. Sci.*, **33**, 1347–1356.
- Coy, L., Nash, E. und Newman, P., 1997: Meteorology of the polar vortex: Spring 1997. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 22, 2693–2696.
- Crutzen, P., 1970: The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, **96**, 320.
- Dethof, A., A.O’Neill und Slingo, J., 2000: Quantification of the isentropic mass transport across the dynamical tropopause. *J. Geophys. Res.*, **105**, D10, 12 279–12 293.
- Dobson, G., 1956: Origin and distribution of polyatomic molecules in the atmosphere. *Proceed. Roy. Soc.*, **236**, 187–193.
- Dobson, G., 1968: Forty years research on atmospheric ozone at Oxford.

- Applied Optics*, **7**, 387–405.
- Dobson, G., Harrison, D. und Lawrence, J., 1929: Measurements of the amount of ozone in the Earth's atmosphere and its relation to other geophysical conditions. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, **122**, 456–486.
- Dritschel, D., 1989: Contour Dynamics and Contour Surgery: Numerical Algorithms for Extended, High-Resolution Modelling of Vortex Dynamics in Two-Dimensional, Inviscid, Incompressible Flows. *Comp. Phys. Reports*, **10**, 79–146.
- Duck, T., Whiteway, J. und Carswell, A., 1998: Lidar observations of gravity wave activity and Arctic stratospheric vortex core warming. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 2813–2816.
- Eichmann, K.-U., 1995: *Optimierung und Validierung des pseudo-sphärischen Strahlungstransportmodells GOMETRAN*. Diplomarbeit, Universität Bremen, Institut für Umweltphysik (Deutschland).
- Eichmann, K.-U., 1996: Vergleich der pseudo-sphärischen Strahlungstransportmodelle GOMETRAN und DISORT. Institute of Environmental Physics, University of Bremen. Unpublished.
- Eichmann, K.-U., Bramstedt, K., Weber, M., Hoogen, R., Rozanov, V. und Burrows, J., 1999a: Structure of ozone mini-holes from GOME. In *European Symposium on Atmospheric Measurements from Space*, ESA-WPP-161, European Space Agency.
- Eichmann, K.-U., Bramstedt, K., Weber, M., Rozanov, V., DeBeek, R., Hoogen, R. und Burrows, J., 2000a: *Interpretation von Ozon-Vertikalprofilen und deren Variationen in der nördlichen Hemisphäre unter Benutzung von GOME Satellitendaten*. Abschlussbericht, Institut für Umweltphysik. BMBF 01LO9607/1.
- Eichmann, K.-U., Bramstedt, K., Weber, M., Rozanov, V., Hoogen, R. und Burrows, J., 1999b: O<sub>3</sub> profiles from GOME satellite data - II: Observations in the Arctic spring 1997 and 1998. *Physics and Chemistry of the Earth*, **24**, 5, 453–457.
- Eichmann, K.-U., Weber, M., Bramstedt, K. und Burrows, J., 2001: Ozone depletion in the NH winter/spring 1999/2000 as measured by GOME on ERS-2. *J. Geophys. Res.* Akzeptiert für JGR SOLVE-THESEO-2000.
- Eichmann, K.-U., Weber, M., Bramstedt, K., Hoogen, R., Rozanov, V. und Burrows, J., 1998: Ozone profile distributions in the Arctic from GOME satellite observations during spring 1997 and 1998. In *Proc. SPIE*, Bd.

3495.

- Eichmann, K.-U., Weber, M., Bramstedt, K., Rozanov, V. und Burrows, J., 2000b: The structure of ozone mini-holes from GOME satellite observations. In *Stratospheric Ozone 1999 - Proc. Fifth European Symposium on Stratospheric Ozone Research*, Bd. 73 of *EC Air Pollution Research Report*. Saint Jean de Luz, France, September 1999.
- Eltermann, L., 1968: *UV, Visible and IR Attenuation for Altitudes to 50 km*. Tech. Rep. AFCRL-68-0153, Air Force Cambridge Research Laboratories, Bedford, MA.
- ESA, 1995, 1995: *GOME Users Manual*. European Space Agency/ESTEC, Noordwijk, esa sp-1182 Aufl..
- de F. Forster, P. und Shine, K., 1997: Radiative forcing and temperature trends from stratospheric ozone changes. *J. Geophys. Res.*, **102**, D9, 10 841–10 855.
- Farman, J., O'Neill, A. und Swinbank, R., 1994: The dynamics of the arctic polar vortex during the EASOE campaign. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 13, 1195–1198.
- Farman, J., Peters, D. und Greisinger, K., 1985: Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO<sub>x</sub> / NO interaction. *Nature*, **315**, 207–210.
- Fortuin, J. und Kelder, H., 1998: An ozone climatology based on ozone-sonde and satellite measurements. *J. Geophys. Res.*, **103**, D24, 31 709–31 719.
- Gao, R., Richard, E., Popp, P., Toon, G., Hurst, D. et al., 2001: Observational evidence for the role of denitrification in Arctic stratospheric ozone loss. *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 15, 2879–2882.
- Gill, A., 1982: *Atmosphere-Ocean Dynamics*. Academic Press.
- Goody, R. und Yung, Y., 1989: *Atmospheric Radiation*. Second Aufl., Oxford University Press.
- Grainger, J. und Ring, J., 1962: Anomalous Fraunhofer Line Profiles. *Nature*, **193**, 762.
- Grant, W., Browell, E., Butler, C., Fenn, M., Clayton, M. et al., 2000: A case study of transport of tropical marine boundary layer and lower tropospheric air masses to the northern midlatitude upper troposphere. *J. Geophys. Res.*, **105**, D3, 3757–3769.
- Grewe, V. und Dameris, M., 1997: Heterogeneous PSC ozone loss during

- an ozone mini-hole. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 20, 2503–2506.
- Guzzi, R., 1993: Surface type and height database. Private communication.
- Hansen, G. und Chipperfield, M., 1999: Ozone depletion at the edge of the Arctic polar vortex 19976/1997. *J. Geophys. Res.*, **104**, D1, 1837–1845.
- 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**, 2, 131–134.
- Hasekamp, O. und Landgraf, J., 2001: Ozone profile retrieval from backscattered ultraviolet radiances: The inverse problem solved by regularization. *J. Geophys. Res.*, **106**, D8, 8077–8088.
- Haynes, P., Marks, C., McIntyre, M., Shepherd, T. und Shine, K., 1991: On the 'downward control' of extratropical diabatic circulations by eddy-induced mean zonal forces. *J. Atmos. Sci.*, **48**, 651–678.
- Heath, D., Krueger, A., Roeder, H. und Henderson, B., 1975: The Solar Backscatter Ultraviolet and Total Ozone Mapping Spectrometer (SBUV/TOMS) for Nimbus. *Optical Engineering*, **14**, 323–332.
- Hints, E., Newman, P., Jonsson, H., Webster, C., May, R., Herman, R., Lait, L., Schoeberl, M., Elkins, J., Wamsley, P., Dutton, G., Bui, T., Kohn, D. und Anderson, J. G., 1998: Dehydration and denitrification in the Arctic polar vortex during the 1995-1996 winter. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 4, 501–504.
- Hoerling, M. et al., 1991: Global objective tropopause analysis. *Monthly Weather Review*, **119**, 1816–1831.
- Hoinka, H., Claude, H. und Köhler, U., 1996: On the correlation between tropopause pressure and ozone above central Europe. *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 1753–1756.
- Hoinka, K., 1997: The tropopause: discovery, definition and demarcation. *Meteorol. Zeitschrift*, **6**, 281–303.
- Hoinka, K., 1998: Statistics of the Global Tropopause Pressure. *Monthly Weather Review*, **126**, 3303–3325.
- Hoinka, K., 1999: Temperature, Humidity, and Wind at the Global Tropopause. *Monthly Weather Review*, **127**, 2248–2265.
- Holton, J., 1992: *An introduction to dynamic meteorology*. Academic Press.
- Holton, J., Haynes, P., McIntyre, M. und Robertson, A., 1995: Stratosphere-troposphere exchange. *Reviews of Geophysics*, **33**, 403–439.
- Hood, L., 1997: The solar cycle variation of total ozone: Dynamical forcing

- on the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **102**, D1, 1355–1370.
- Hood, L. und McCormack, J., 1997: An investigation of dynamical contributions to midlatitude ozone trends in winter. *J. Geophys. Res.*, **102**, D11, 13 079–13 093.
- Hood, L., Rossi, S. und Beulen, M., 1999: Trends in lower stratospheric zonal winds, Rossby wave breaking behavior, and column ozone at northern midlatitudes. *J. Geophys. Res.*, **104**, D20, 24 321–24 339.
- Hood, L. und Zaff, D., 1995: Lower stratospheric stationary waves and the longitude dependence of ozone trends in winter. *J. Geophys. Res.*, **100**, 25 791–25 800.
- Hoogen, R., 1995: Mie Theory Outline and IUPMIE User's Guide. University of Bremen, unpublished.
- Hoogen, R., 1998: *Inversion globaler Ozonvertikalverteilungen aus Messungen des Satelliteninstruments GOME*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Hoogen, R., Rozanov, V. V., Bramstedt, K., Eichmann, K.-U., Weber, M. und Burrows, J. P., 1999a: O<sub>3</sub> Profiles from GOME Satellite Data - I: Comparison with Ozonesonde Measurements. *Physics and Chemistry of the Earth*, **24**, 5, 447–452.
- Hoogen, R., Rozanov, V. V. und Burrows, J. P., 1999b: Ozone Profiles from GOME Satellite Data: Algorithm Description and First Validation. *J. Geophys. Res.*, **104**, 8263–8280.
- Hoskins, B., 1991: Towards a PV- $\theta$  view of the general circulation. *Tellus*, **43**, 27–35.
- Hurrell, J., 1996: Influence of variations in extratropical wintertime teleconnections on Northern Hemisphere temperatures. *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 665–668.
- Jackmann, C., Fleming, E., Chandra, S., Considine, D. und Rosenfield, J., 1996: Past, present, and future modeled ozone trends with comparisons to observed trends. *J. Geophys. Res.*, **101**, D22, 28 753–28 767.
- James, P., 1998a: A climatology of ozone mini-holes over the northern hemisphere. *International Journal of Climatology*, **18**, 1287–1303.
- James, P., 1998b: An interhemispheric comparison of ozone mini-hole climatologies. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 3, 301–304.
- James, P., Peters, D. und Greisinger, K., 1997: A Study of Ozone Mini-hole Formation Using a Tracer Advection Model Driven by Barotropic

- Dynamics. *Meteorol. Atmos. Phys.*, **64**, 107–121.
- Joiner, J., Barthia, P., Cebula, R., Hilsenrath, E., McPeters, R. und Park, H., 1995: Rotational Raman scattering (Ring effect) in satellite backscatter ultraviolet measurements. *Applied Optics*, **34**, 21, 4513–4525.
- Kneizys, F., Abreu, L., Anderson, G., Chetwynd, J., Shettle, E., Berk, A., Bernstein, L., Robertson, D., Acharya, P., Rothman, L., Selby, J., Gallery, W. und Clough, S., 1996: *The MODTRAN 2/3 Report and LOWTRAN 7 Model*. Tech. Rep., Phillips Laboratory, Hanscom AFB. Contract F19628-91-C-0132 with Ontar Corp.
- Kneizys, F., Shettle, E., Gallery, W. et al., 1983: *Atmospheric Transmittance/ Radiance: Computer Code LOWTRAN6*. Tech. Rep. AFGL-TR-83-0187, Air Force Geophysics Laboratory, Hanscom AFB, MA 01736.
- Kneizys, F., Shettle, E., L.W. Abreu, J. C., Anderson, G., Gallery, W., Selby, J. und Clough, S., 1988: *Users Guide to LOWTRAN7*. Tech. Rep. AFGL-TR-88-0177, Air Force Geophysics Laboratory, Hanscom AFB, MA 01736.
- Knudsen, B. und Carver, G., 1994: Accuracy of the isentropic trajectories calculated for the EASOE campaign. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 13, 1199–1202.
- Knudsen, B., Lahoz, W., O'Neill, A. und Morcrette, J.-J., 1998a: Evidence for a substantial role for dilution in northern mid-latitude ozone depletion. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 24, 4501–4504.
- Knudsen, B., Larsen, N., Mikkelsen, I., Morcrette, J., Braathen, G. O., Kyrö, E., Fast, H., Gernandt, H., Kanzawa, H., Nakane, H., Dorokhov, V., Yushkov, V., Hansen, G., Gil, M. und Shearman, R. J., 1998b: Ozone depletion in and below the Arctic vortex for 1997. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 5, 627–630.
- Kodera, K., Kuroda, Y. und Pawson, S., 2000: Stratospheric warmings and slowly propagating zonal-mean zonal wind anomalies. *J. Geophys. Res.*, **105**, D10, 12 351–12 359.
- von König, M., 2000: *Chloratktivierung und PSC-Bildung in der arktischen Stratosphäre*. Doktorarbeit, University of Bremen.
- Kozlov, V., 1983: Design of experiments related to the inverse problem of mathematical physics. In *Mathematical Theory of Experiment Design*, Ermakov, C. M., Hrsg., Nauka Press, Moscow, 216–246.
- Krueger, A., 1995: *Diagnostic Tools in Atmospheric Physics*, Kap. UV re-

- mote sensing of the Earth's atmosphere. Amsterdam: IOS Press, 155–181.
- Kurosu, T., 1997: *Die Modellierung des Strahlungstransports in Wolken für atmosphärische Fernerkundung im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich*. Doktorarbeit, University of Bremen. Verlag Mainz/Wissenschaftsverlag Aachen, Aachen, ISBN 3-89653-185-7.
- Kurosu, T., Rozanov, V. und Burrows, J., 1997: Parameterization schemes for terrestrial water clouds in the radiative transfer model GOMETRAN. *J. Geophys. Res.*, **102**, D18, 21 809–21 823.
- Lait, L., 1994: An alternative form for potential vorticity. *J. Atmos. Sci.*, **51**, 1754–1759.
- Lambert, J.-C., Roozendael, M. V., Mazière, M. D., Simon, P., Pommeroy, J.-P., Goutail, F., Sarkissian, A. und Gleason, J., 1999: Investigation of Pole-to-Pole Performances of Spaceborne Atmospheric Chemistry Sensors with the NDSC. *J. Atmos. Sci.*, **56**, 2, 176–193.
- Langer, J., 1999: *Messungen des arktischen stratosphärischen Ozons: Vergleich der Ozonmessungen in Ny-Alesund, Spitzbergen, 1997 und 1998*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Lenoble, E. J., 1985: *Radiative Transfer in Scattering and Absorbing Atmospheres: Standard Computational Procedures*. Hampton, VA, USA: Deepak Publishing.
- van der Leun, J., Tang, X. und Tevini, M., 1995: Environmental effects of ozone depletion: 1994 assessment. *Ambio*, **14**.
- Malberg, H., 1997: *Meteorologie und Klimatologie*. Springer.
- Manney, G., Froidevaux, L., Santee, M., Zurek, R. und Waters, J., 1997: MLS observations of Arctic ozone loss in 1996-1997. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 22, 2697–2700.
- Manney, G. und Sabutis, J., 2000: Development of the polar vortex in the 1999-2000 Arctic winter stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 17, 2589–2592.
- Manney, G., Swinbank, R., Massie, S., Gelman, M., Miller, A., Nagatani, R., O'Neill, A. und Zurek, R., 1996: Comparison of U.K. Meteorological Office and U.S. National Meteorological Center stratospheric analyses during northern and southern winter. *J. Geophys. Res.*, **101**, D6, 10 311–10 334.
- Manney, G., Zurek, R., O'Neill, A. und Swinbank, R., 1994: On the Motion of Air through the Stratospheric Polar Vortex. *J. Atmos. Sci.*, **51**, 20,

- 2973–2994.
- McCormack, J. und Hood, L., 1997: The frequency and size of ozone mini-hole events at northern midlatitudes in February. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 21, 2647–2650.
- McIntyre, M. und Palmer, T., 1983: Breaking planetary waves in the stratosphere. *Nature*, **305**, 593–600.
- McIntyre, M. und Palmer, T., 1984: The "surf zone" in the stratosphere. *J. Atmos. Terr. Phys.*, **46**, 825–849.
- McKenna, D., Jones, R., Austin, J., Browell, E. et al., 1989: Diagnostic Studies of the Antarctic Vortex during the 1987 Airborne Antarctic Ozone Experiment: Ozone Miniholes. *J. Geophys. Res.*, **94**, D9, 11 641–11 668.
- McPeters, R. und Labow, G., 1996: An assessment of the accuracy of 14.5 years of Nimbus 7 TOMS Version 7 ozone data by comparison with the Dobson network. *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 25, 3695–3698.
- Menke, W., 1989: *Geophysical Data Analysis: Discrete Inverse Theory*. San Diego: Academic Press.
- Molina, L. und Molina, M., 1986: Absolute Absorption Cross Sections of Ozone in the 185– to 350–nm Wavelength Range. *J. Geophys. Res.*, **91**, 14 501–14 508.
- Molina, L. und Molina, M., 1987: Production of Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub> from self-reaction of the ClO radical. *J. Phys. Chem.*, **91**, 433–436.
- Molina, M. und Rowland, F., 1974: Stratospheric sink for chlorofluoromethanes, chlorine atom catalysed destruction of ozone. *Nature*, **249**, 810.
- Müller, R., Crutzen, P., Grooß, J.-U., Brühl, C., Russell, J., Gernandt, H., McKenna, D. et al., 1997a: Severe chemical ozone loss in the Arctic during the winter of 1995–1996. *Nature*, **389**, 709–712.
- Müller, R., Grooß, J.-U., McKenna, D., Crutzen, P., Brühl, C., Russell, I., J.M. und Tuck, A., 1997b: 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**, 22, 2717–2720.
- Munro, R., Siddans, R., Reburn, W. und Kerridge, B., 1998: Direct measurement of tropospheric ozone distributions from space. *Nature*, **392**, 168–171.
- NASA, 1976: *U.S. Standard Atmosphere*. Tech. Rep., United States Air Force.
- Nash, E., Newman, P., Rosenfield, J. und Schoeberl, M., 1996: An objective

- determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity. *J. Geophys. Res.*, **101**, D5, 9471–9478.
- Newman, P., Gleason, J., McPeters, R. und Stolarski, R., 1997: Anomalous low ozone over the Arctic. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 22, 2689–2692.
- Newman, P., Lait, L. und Schoeberl, M., 1988: The morphology and meteorology of southern hemisphere Spring total ozone mini-holes. *Geophys. Res. Lett.*, **15**, 923–926.
- Norton, W., 1994: Breaking Rossby Waves in a Model Stratosphere Diagnosed by a Vortex-Following Coordinate System and a Technique for Advecting Material Contours. *J. Atmos. Sci.*, **51**, 4, 654–673.
- Petzold, K., Naujokat, B. und Neugeboren, K., 1994: Correlation between stratospheric temperature, total ozone, and tropospheric weather systems. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 13, 1203–1206.
- Pichler, H., 1997: *Dynamik der Atmosphäre*. Spektrum.
- Pierce, R., Fairlie, T., Remsberg, E., Russell, I., J.M. und Grose, W., 1997: HALOE observations of the Arctic vortex during the 1997 spring: Horizontal structure in the lower stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 22, 2701–2704.
- Planet, W., Crosby, D., Lienesch, J. und Hill, M., 1984: Determination of total ozone amount from TIROS radiance measurements. *J. Clim. Appl. Meteorol.*, **23**, 308.
- Platt, U., 1994: Differential optical absorption spectroscopy (DOAS). In *Air Monitoring by Spectroscopic Techniques*, Siegrist, M., Hrsg., Bd. 127 of *Chemical Analysis Series*, John Wiley and Sons, 27–84.
- Platt, U. und Perner, D., 1980: Direct measurements of atmospheric CH<sub>2</sub>O, HNO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, and SO<sub>2</sub> by differential optical absorption in the near UV. *J. Geophys. Res.*, **85**, 7453–7458.
- Plumb, R., Waugh, D., Atkinson, R., Newman, P., Lait, L., Schoeberl, M., Browell, E., Simmons, A. und Loewenstein, M., 1994: Intrusions into the lower stratospheric Arctic vortex during the winter of 1991–1992. *J. Geophys. Res.*, **99**, 1089–1105.
- Press, W., Teukolsky, S., Vetterling, W. und Flannery, B., 1992: *NUMERICAL RECIPES in FORTRAN*, Kap. 2.3. 2. Aufl., Cambridge University Press, 34–42.
- Randel, W., Wu, F., III, J. R., Roche, A. und Waters, J., 1998: Seasonal Cycles and QBO Variations in Stratospheric CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub>O Observed in

- UARS HALOE Data. *J. Atmos. Sci.*, **55**, 2, 163–185.
- Rex, M., von der Gathen, P., Harris, N., Lucic, D., Knudsen, B. et al., 1998: In situ measurements of stratospheric ozone depletion rates in the Arctic winter 1991/1992: A Lagrangian approach. *J. Geophys. Res.*, **103**, D5, 5843–5853.
- Rex, M., Harris, N., Gathen, P., Lehman, R. et al., 1997: Prolonged stratospheric ozone loss in the 1995/96 Arctic winter. *Nature*, **389**, 835–838.
- Rex, M., Salawitch, R., Harris, N., von der Gathen, P. et al., 2000: Arctic ozone loss in 1999/2000 winter - largest local ozone loss. *J. Geophys. Res.* Submitted.
- Richter, A., 1997: *Absorptionsspektroskopische Messungen stratosphärischer Spurengase über Bremen, 53°N*. Doktorarbeit, Universität Bremen, Institute of Environmental Physics.
- Richter, A., Eisinger, M., Wittrock, F., Schlieter, S., Ladstätter-Weissenmayer, A. und Burrows, J., 1998: Zenith sky measurements and GOME DOAS measurements of atmospheric trace gases above Bremen, 53°N, 1994–1997. In *Polar Stratospheric Ozone 1997 - Proc. Fourth European Symposium on Stratospheric Ozone Research*, Harris, N., Kilbane-Dawe, I. und Amanatidis, G., Hrsg., Bd. 66 of *Air Pollution Research Report*, BMBF, Luxembourg: European Commission. 22.–26. September 1997, Schliersee, Germany.
- R.J.D. Spurr, 1996: *GOME Level 1 to 2 Algorithms Description*. Tech. Rep., Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt (DLR), Deutsches Fernerkundungs Datenzentrum (DFD). ER-TN-DLR-GO-0025.
- Rodgers, C., 1976: Retrieval of Atmospheric Temperature and Composition from Remote Measurements of Thermal Radiation. *Reviews of Geophysics and Space Physics*, **14**, 4, 609–624.
- Rodgers, C., 2000: *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, Bd. 2 of *Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics*. World Scientific Publishing.
- Rodgers, C. D., 1996: Information content and optimization of high-spectral-resolution measurements. In *Proc. SPIE*, Bd. 2830.
- Roedel, W., 1992: *Physik unserer Umwelt - Die Atmosphäre*. Berlin: Springer Verlag.
- Rood, R., Nielsen, J., Stolarski, R., Douglass, A. et al., 1992: Episodic total ozone minima and associated effects on heterogeneous chemistry and

- lower stratospheric transport. *J. Geophys. Res.*, **97**, D8, 7979–7996.
- Rosenfield, J., Newman, P. und Schoeberl, M., 1994: Computations of diabatic descent in the stratospheric polar vortex. *J. Geophys. Res.*, **99**, 16 677–16 689.
- Rozanov, V., Buchwitz, M., Eichmann, K.-U., de Beek, R. und Burrows, J., 2000: SCIATRAN - A new radiative transfer model for geophysical applications in the 240 – 2400 nm spectral region: The pseudo-spherical version. In *COSPAR*. Submitted.
- Rozanov, V., Diebel, D., Spurr, R. und Burrows, J., 1997: GOMETRAN: A Radiative Transfer Model for the Satellite Project GOME, The Plane-Parallel Version. *J. Geophys. Res.*, **102**, D14, 16 683–16 695.
- Rozanov, V., Kurosu, T. und Burrows, J., 1998: Retrieval of atmospheric constituents in the UV-visible: A new quasi-analytical approach for the calculation of weighting functions. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **60**, 277–299.
- Rummukainen, M., Knudsen, B. und von der Gathen, P., 1994: Dynamical diagnostics of the edges of the polar vortices. *Annales Geophysicae*, **12**, 1114–1118.
- Russell, J. M., Gordley, L. L., Park, J. H., Drayson, S. R., Hesketh, W. D., Cicerone, R. J., Tuck, A. F., Frederick, J. E., Harries, J. E. und Crutzen, J. P., 1993: The Halogen Occultation Experiment. *J. Geophys. Res.*, **98**, 10 777–10 797.
- Salby, M. und Callaghan, P., 1993: Fluctuations of total ozone and their relationship to stratospheric air motions. *J. Geophys. Res.*, **98**, D2, 2715–2727.
- Santee, M., Manney, G., Livesey, N. und Waters, J., 2000: UARS Microwave Limb Sounder Observations of Denitrification and Ozone Loss in the 2000 Arctic Late Winter. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 19, 3213–3216.
- Schoeberl, M. und Newman, P., 1995: A multiple-level trajectory analysis of vortex filaments. *J. Geophys. Res.*, **100**, 25 801–25 816.
- Schulz, A., Rex, M., Harris, N., Braathen, G., Reimer, E. et al., 2001: Arctic ozone loss in treshold conditions: Match observations in 1997/1998 and 1998/1999. *J. Geophys. Res.*, **106**, D7, 7495–7503.
- Schulz, A., Rex, M., Steger, J., Harris, N. et al., 2000: Match observations in the Arctic winter 1996/97: High stratospheric ozone loss rates correlate with low temperatures deep inside the polar vortex. *Geophys. Res. Lett.*,

- 27**, 2, 205–208.
- Shannon, C. und Weaver, W., 1962: *The Mathematical Theory of Communication*. Urbana: University of Illinois Press.
- Shefov, N. N., 1959: Spectroscopic, photoelectric, and radar investigations of aurorae and the nightglow. *Izd. Akad. Nauk*, **1**. (in russisch).
- Shine, K., 1987: The middle atmosphere in the absence of dynamical heating fluxes. *Q.J.R.Meteorol.Soc.*, **113**, 603–633.
- Shine, K., 1991: On the cause of the Relative Greenhouse Strength of Gases such as the Halocarbons. *J. Atmos. Sci.*, **48**, 12, 1513–1518.
- Singer, S. und Wentworth, R., 1957: A method for the determination of the vertical ozone distribution from a satellite. *J. Geophys. Res.*, **62**, 299–308.
- Sinnhuber, B., 1999: *Variabilität der arktischen Ozonschicht: Analyse und Interpretation bodengebundener Millimeterwellenmessungen*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Sinnhuber, B.-M., Chipperfield, M., Davies, S., Burrows, J., Eichmann, K.-U., Weber, M., van der Gathen, P., Guirlet, M., Cahill, G., Lee, A. und Pyle, J., 2000: Large loss of total ozone during the Arctic winter 1999/2000. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 21, 3473–3476.
- Sinnhuber, B.-M., Langer, J., Klein, U., Raffalski, U. und Künzi, K., 1998: Ground based millimeter-wave observations of Arctic ozone depletion during winter and spring of 1996/97. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 17, 3227–3330.
- Smith, F. (Hrsg.), 1993: *Atmospheric Propagation of Radiation*, Kap. Atmospheric Transmission. SPIE.
- Sobel, A., Plumb, R. und Waugh, D., 1997: Methods of Calculating Transport across the Polar Vortex Edge. *J. Atmos. Sci.*, **54**, 18, 2241–2260.
- Sobolev, V., 1975: *Light Scattering in Planetary Atmospheres*. Pergamon Press Ltd.
- Solomon, S., 1999: Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history. *Rev. Geophys.*, **37**, 3, 275–316.
- Solomon, S., Portmann, R., Sanders, R. und Daniel, J., 1998: Absorption of solar radiation by water vapor, oxygen, and related collision pairs in the Earth's atmosphere. *J. Geophys. Res.*, **103**, D4, 3847–3858.
- Sparling, L., Kettleborough, J., Haynes, P., McIntyre, M., Rosenfield, J., Schoeberl, M. und Newman, P. A., 1997: Diabatic cross-isentropic dispersion in the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **102**, D22, 25 817–

25 829.

- Stamnes, K. und Conklin, P., 1984: A New Multi-Layer Discrete Ordinate Approach to Radiative Transfer in Vertically Inhomogeneous Atmosphere. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **31**, 273–282.
- Stamnes, K., Tsay, S., Wiscombe, W. und Jayaweera, K., 1988: Numerically Stable Algorithm for Discrete–Ordinate–Method: Radiative Transfer in Multiple Scattering and Emitting Layered Media. *Applied Optics*, **27**, 12, 2502–2509.
- Steinbrecht, W., Claude, H. und Köhler, U., 1998: Correlations between tropopause height and total ozone: Implications for long-term changes. *J. Geophys. Res.*, **103**, D15, 19 183–19 192.
- Swinbank, R. und O’Neill, A., 1994: A Stratosphere-Troposphere Data Assimilation System. *Monthly Weather Review*, **122**, 686–702.
- Trentmann, J., Eichmann, K.-U. und Sinnhuber, B., 1998: Das Trajektorienmodell TANGO. Persönliche Kommunikation.
- Voemel, H., Rummukainen, M., Kivi, R., Karhu, J. et al., 1997: Dehydration and sedimentation of ice particles in the Arctic stratospheric vortex. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 7, 795–798.
- Vountas, M., 1998: *Die Modellierung und Parametrisierung des Ring Effektes: Einfluß auf die Bestimmung von stratosphärischen Spurengasen*. Universität Bremen. Dissertation am Institut für Umweltphysik.
- Vountas, M., Rozanov, V. V. und Burrows, J. P., 1998: Ring effect: Impact of rotational Raman scattering on radiative transfer in Earth’s atmosphere. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **60** (6), 943–961.
- Wagner, T., Wittrock, F., Richter, A., Wenig, M., Burrows, J. und Platt, U., 2001: Continuous monitoring of the high and persistent chlorine activation during the Arctic winter 1999/2000 by the GOME instrument on ERS-2. *J. Geophys. Res.* Accepted.
- Waibel, A. et al., 1999: Arctic ozone loss due to denitrification. *Science*, **283**, 3327–3330.
- Warnecke, G., 1997: *Meteorologie und Umwelt*. Springer Verlag.
- Warrick, R., Barrow, E. und Wigley, T., 1990: *The Greenhouse Effect and its Implications for the European Community*. Luxembourg: Commission of the European Communities.
- Waugh, D. und Plumb, R., 1994: Contour Advection with surgery: A technique for investigating finescale structure in tracer transport. *J. Atmos. Sci.*,

- 51, 530–540.
- Wayne, R., 1999: *Chemistry of Atmospheres*. Third Aufl., Oxford: Clarendon Press.
- Weber, M., Burrows, J. und Cebula, R., 1998: GOME Solar UV/VIS Irradiance Measurements between 1995 and 1997 – First Results on Proxy Solar Activity Studies. *Solar Physics*, **177**, 63–77.
- Weber, M., Eichmann, K.-U., Bramstedt, K., Burrows, J., 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 *Proc. Quadrennial Ozone Symp.*, EC Air Pollution Research Report. Sapporo, 3-8 July 2000.
- Weber, M., Eichmann, K.-U., Wittrock, F., Bramstedt, K., Hild, L., Richter, A., Burrows, J. und Müller, R., 2001: The cold Arctic winter 1995/1996 as observed by the Global Ozone Monitoring Experiment GOME and HALOE: Tropospheric wave activity and chemical ozone loss. *Q.J.R.Meteorol.Soc.* Accepted.
- Weiss, A., 2000: *Anthropogenic and dynamic contributions to ozone trends of the Swiss total ozone, Umkehr and balloon sounding series*. Doktorarbeit, Swiss Federal Institute of Technology Zurich.
- Wells, B., 1997: The hole truth. *Nature*, **390**, 438.
- Wiscombe, W. J., 1979: *Mie scattering calculations: Advances in technique and fast, vector-speed computer codes*. Tech. Rep. TN-140+STR, National Center for Atmospheric Research NCAR, Boulder, Colorado.
- Wittrock, F., Eisinger, M., Ladstätter-Weissenmayer, A., Richter, A. und Burrows, J., 1996: Ground Based UV/VIS Measurements of O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, BrO, and OCIO over Ny Alesund (79°N, 12°E). In *Polar Stratospheric Ozone - Proceedings of the 3rd European Workshop (18–22 September, Schliersee, 1995)*, Pyle, J., Harris, N. und Amanatidis, G., Hrsg., Air Pollution Research Report 56, European Commission, Luxembourg.
- World Meteorological Organization, 1985: *Atmospheric Ozone*. Tech. Rep. Report No. 16, World Meteorological Organization, Global Ozone Research and Monitoring Project, Geneva.
- World Meteorological Organization, 1995: *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1994*. Tech. Rep. Report No. 37, World Meteorological Orga-

- nization, Global Ozone Research and Monitoring Project, Geneva.
- World Meteorological Organization (WMO), 1999: *Scientific assessment of ozone depletion*. Tech. Rep. Report No. 44, World Meteorological Organization, Global Ozone Research and Monitoring Project, Geneva.
- Young, A., 1980: Revised Depolarization Corrections for Atmospheric Extinction. *Applied Optics*, **19**, 3427–3428.
- Zellner, R., Peter, T., Dämmer, K. und Quintern, L. (Hrsg.), 1999: *10 Jahre Deutsche Ozonforschung*. Verlag für Marketing und Kommunikation.
- Zurek, R., Manney, G., Miller, A., Gelman, M. und Nagatani, R., 1996: Interannual variability of the north polar vortex in the lower stratosphere during the UARS mission. *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 3, 289–292.

## D Akronyme

---

Akronym	Bedeutung
ADEOS	Advanced Earth Observing Satellite
ASUR	Airborne Submillimeter Radiometer
BUV	Backscatter ultraviolet technique
CSO	Cooler Switch-Off
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
DOAS	Differential Optical Absorption Spectroscopy
DU	Dobson Unit
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
ENVISAT	ENVironment SATellite
ERBS	Earth Radiation Budget Satellite
ERS-2	European Remote-sensing Satellite
ESA	European Space Agency
ESFT	Exponential Sum FiTting
FCKW	Fluorchlorkohlenwasserstoffe
FMI	Finnish Meteorological Institute
FURM	Full Retrieval Model
FWHM	Full Width at Half Maximum
GOME	Global Ozone Monitoring Experiment
GMT	Greenwich Mean Time
HALOE	Halogen Occultations Experiment
HITRAN	HIgh-resolution TRANsmission molecular absorption
ICFA	Initial Cloud Fitting Algorithm
IUP	Institut für Umweltphysik

---

*Fortsetzung folgt*

*Fortsetzung*

Akronym	Bedeutung
LIDAR	Light Detection and Ranging
MODTRAN	MODerate resolution TRANsmission
NASA	National Aeronautics and Space Administration
PMD	Polarisation Measurement Device
PSC	Polar Stratospheric Cloud
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SBUV	Solar Backscattered UltraViolet instrument
SCD	slant column densities
SCIAMACHY	SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartographY
STG	Strahlungstransportgleichung
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
TOVS	TIROS Operational Vertical Sounder
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite
UKMO	United Kingdom Meteorological Office
VMR	Volume Mixing Ratio
Abkürzung	Bedeutung
IR	infrared
LS	lower stratosphere
UT	upper troposphere
UV	ultraviolet
vis	visible

## Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all jenen bedanken, die diese Arbeit ermöglicht und mich bei der Erstellung unterstützt haben. Die Dissertation ist am Institut für Umweltphysik der Universität Bremen entstanden. So gilt mein Dank allen Mitarbeitern des Instituts.

Besonderen Dank möchte ich Prof. John P. Burrows aussprechen, der in seiner Funktion als Leiter der Abteilung Physik und Chemie der Atmosphäre und Vater der Satellitenprojekte GOME und SCIAMACHY mir dieses interessante Thema anvertraute und mir während meiner Promotionszeit stets mit Rat und Tat zur Seite stand. Prof. J. Bleck-Neuhaus danke ich für die Übernahme der Begutachtung der Arbeit.

Dr. Mark Weber hat das OFP-Projekt am IUP geleitet, das grundlegend für den Erfolg der Datenauswertung war. Er stand mir stets mit wichtigen kritischen Fragen und Antworten zur Seite. Mir ihm konnte man alle Probleme zu dem Thema und darüber hinaus diskutieren. Er hat mich weiterhin sehr stark bei der Verbesserung der JGR-Publikation unterstützt. Dafür möchte ich mich vielmals bedanken. Mit M. Weber und K. Bramstedt bildeten wir den Anwenderteil der GOME-Arbeitsgruppe Ozonprofile. Beiden muss ich nochmals für die gute Arbeitsteilung, insbesondere in Vorarbeit auf Konferenzen bei der Erstellung von Postern und Fachbeiträgen danken.

Weiterhin danke ich den Personen und Institutionen, die wichtige Beiträge geleistet haben zum Gelingen der Arbeit: V.V. Rozanov, R. Hoogen und R. de Beek haben die Entwicklung des FURM Algorithmus vorangebracht. V.V. Rozanov ist darüber hinaus auch die treibende Kraft bei der Entwicklung des Strahlungstransportmodells GOMETRAN gewesen. Klaus Bramstedt hat das quasi-operationelle System der FURM Auswertung erstellt. B. M. Sinnhuber hat die Grundlage für die jetzige Version des TANGO Modells geliefert, J. Trentmann die erste TANGO-Version programmiert.

G. Braathen hat die Ozonsondendaten zur Verfügung gestellt, A. Lee die SLIMCAT Daten. Das Modell zur Berechnung von Heizraten stammt von K. Shine. Das ECMWF und UKMO hat die meteorologischen Daten bereitgestellt. Die TOMS Daten stammen von der NASA.

Dank geht auch an die Systemadministratoren H. Schellhorn, H. Schröter und M. Vountas, die mir bei den alltäglichen, kleinen Problemen mit dem Computersystemen geholfen haben.

Bei der Korrektur der Arbeit haben mir A. Bracher, K. Bramstedt, H. Bremer, M. Buchwitz, R. de Beek, J. Kaiser, J. Meyer, M. Vountas und M. Weber sehr geholfen. Ich möchte mich bei ihnen dafür herzlich bedanken.

Zu guter Letzt möchte ich mich bei der Mensa- und Kaffeetrinkerrunde, die im Laufe der letzten Jahre stark expandierte, für all die interessanten Diskussionen, auch abseits der Physik, bedanken.