



**Messung von stratosphärischem  
Chlormonoxid und Wasserdampf  
in der Arktis**

**Erweiterung und Optimierung des  
passiven Mikrowellenradiometers RAM  
in Ny-Ålesund, Spitzbergen**

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

vorgelegt von  
Dipl. Phys. Kai Lindner

Institut für Umweltphysik  
Fachbereich 1, Physik und Elektrotechnik  
Universität Bremen

Version vom 20. Dezember 2001  
Revision vom 21. März 2002

*Für meine Eltern...*



# Inhaltsverzeichnis

<b>Abstract</b>	12
<b>Vorwort</b>	13
<b>Einleitung</b>	15
<b>I Grundlagen der Atmosphärenphysik</b>	21
<b>1 Die Atmosphäre der Erde</b>	23
1.1 Zusammensetzung und Vertikalstruktur	23
1.2 Dynamik und Transportprozesse	27
1.3 Polarwirbel	28
1.4 Polare Stratosphärenwolken	31
<b>2 Chlormonoxid in der Atmosphäre</b>	33
2.1 Ozonchemie nach Chapman	33
2.2 Katalytische Chemie	34
2.3 Heterogene Chemie	36
2.4 Chlormonoxid Tagesgang	39
2.5 Herkunft und Entwicklung atmosphärischen Chlors	41
<b>3 Wasserdampf in der Atmosphäre</b>	45
3.1 Globale Verteilung und Dynamik	45
3.2 Wasserdampf und katalytische Ozonchemie	51
3.3 Eine Studie zum Einfluß von Wasserdampf auf Mikrowellenmessungen	52
<b>II Passive Mikrowellenradiometrie</b>	57
<b>4 Grundlagen der Radiometrie</b>	59
4.1 Heterodynverfahren	59
4.2 Systemempfindlichkeit	60

4.3	Baseline Effekte	62
4.4	Totalpower Verfahren	63
4.5	Referenzstrahl Verfahren	64
4.6	Referenzstrahl oder Totalpower Verfahren	68
4.7	Zusammenfassung der Meßdaten	69
<b>5</b>	<b>Atmosphärische Mikrowellenstrahlung</b>	<b>73</b>
5.1	Spektrallinien	73
5.2	Strahlungstransport	76
5.3	Linienform	77
5.4	Vorwärtsmodell und Inversion	82
5.5	Auflösungsmatrix und Fehler	85
5.6	Chlormonoxid- und Wasserdampf-Retrieval	88
5.7	Fazit zu diesem Kapitel	90
<b>6</b>	<b>Das Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen</b>	<b>91</b>
6.1	Backend	91
6.2	Chlormonoxid Frontend	93
6.3	Wasserdampf Frontend	99
6.4	Anpassung der Plexiglasplatten	106
6.5	Das Steuerungsprogramm MCP	107
6.6	Ablauf einer Messung	108
6.7	Bestimmung der Allan Varianz	111
6.8	Fazit zu diesem Kapitel	114
<b>III</b>	<b>Messungen in Ny-Ålesund</b>	<b>117</b>
<b>7</b>	<b>Messungen stratosphärischen Chlormonoxids</b>	<b>119</b>
7.1	Aufbereitung der Spektren	119
7.2	Chlormonoxid Retrieval	124
7.3	Probleme bei der Kalibration der internen kalten Last	125
7.4	Chloraktivierung und Ozonabbau im Winter 2000	126
7.5	Der Winter 2000 im Vergleich zum ASUR Instrument	132
7.6	Der Winter 2000 im Vergleich zum Modell SLIMCAT	134
7.7	Der Winter 2000 im Vergleich zum ClONO <sub>2</sub> Instrument	139
7.8	Messung des Chlormonoxid Tagesganges	140
7.9	Chloraktivierung im Winter 2001	149

INHALTSVERZEICHNIS	7
7.10 Fazit zu diesem Kapitel	151
<b>8 Messungen stratosphärischen Wasserdampfes</b>	153
8.1 Wasserdampfmessungen mit dem Referenzstrahl Verfahren	153
8.2 Wasserdampfmessungen mit dem Totalpower-Verfahren	160
8.3 Stehwellen in den Totalpower Spektren	167
8.4 Fazit zu diesem Kapitel	169
<b>9 Zusammenfassung</b>	171
<b>10 Ausblick</b>	175
<b>Anhang</b>	183
<b>A Programme der Auswertung</b>	185
<b>B Spezielle Problemlösungen</b>	191
<b>C Spektroskopische Parameter</b>	197
<b>D Technische Daten</b>	199
<b>E Symbole der Mikrowellenkomponenten</b>	205
<b>F Sonnenstandsdiagramm für Ny-Ålesund</b>	207
<b>G Abkürzungen</b>	209
<b>H Glossar</b>	211
<b>I Danksagungen</b>	217
<b>J Veröffentlichungen</b>	219

# Abbildungsverzeichnis

1	Weltkarte mit den NDSC Stationen	16
2	Karte des Nordatlantiks mit Ny-Ålesund	17
3	NDSC Observatorium in Ny-Ålesund	18
1.1	Temperaturprofil von Ny-Ålesund	24
1.2	Globale meridionale Zirkulation nach Holton	27
1.3	Polarwirbel über Ny-Ålesund für die Jahre 2000 und 2001	30
2.1	Chloraktivierung und der daraus resultierende Ozonabbau	38
2.2	Modellrechnungen über die Partionierung von Chlormonoxid und seinem Dimer	40
2.3	Globaler Chlorhaushalt	42
2.4	Einfluß internationaler Protokolle auf die zukünftige Entwicklung stratosphärischen Chlors	43
3.1	Wasserdampf und Methan VMR aus Daten des HALOE Instruments	48
3.2	Tropischer Tape Recorder Effekt	49
3.3	Trends in der Entwicklung atmosphärischen Wasserdampfes	50
3.4	Modellrechnungen für die 278 GHz Chlormonoxid-Linie an vier verschiedenen Standorten	54
3.5	Modellierter Vergleich von Ny-Ålesund und Summit	55
4.1	Kalibration der Strahlungsleistung mit der Totalpower Methode	64
4.2	Beobachtungsgeometrie beim Referenzstrahl Verfahren	65
4.3	Beispiel für die Bestimmung des zum Referenzstrahl passenden Signalwinkels	66
4.4	Relativer Fehler bei der Verwendung der Airmass-Faktoren	70
5.1	Synthetisches Spektrum des Frequenzbereiches von 0 bis 400 GHz	75

ABBILDUNGSVERZEICHNIS	9
5.2 Vorwärtsspektren für Wasserdampf und Chlormonoxid	81
5.3 Beispiel für die Auflösungsfunktionenmatrix	86
6.1 Schemazeichnung des RAM Backends	92
6.2 Schemazeichnung des RAM Chlormonoxid Frontends	93
6.3 Verbesserung der Chlormonoxid Baseline	97
6.4 Bild des Chlormonoxid Radiometers im NDSC Observatorium	98
6.5 Schemazeichnung des RAM Wasserdampf Frontends	99
6.6 Veränderung der System Rauschtemperatur des Wasserdampf Radiometers von 1999 bis 2001	101
6.7 Stehwellen auf dem Wasserdampf Spektrum	103
6.8 Bild des Wasserdampf Radiometers im NDSC Observatorium	105
6.9 Struktur des Meßablaufes mit dem Programm MCP	109
6.10 Ablaufdiagramme für Totalpower- und Referenzstrahlmessungen	110
6.11 Allan Varianz des Wasserdampf Radiometers	112
6.12 Beispielschemata für verbesserte Meßabläufe	114
7.1 Beispiele für die Aufbereitung der ClO Spektren	122
7.2 Beispiel für eine Chlormonoxid Inversion.	125
7.3 Der nördliche Polarwirbel für den Winter 1999/2000	127
7.4 Vier Beispiele für die Entwicklung des Polarwirbels im Winter 2000	128
7.5 Potentielle PSC Fläche im Winter 2000 auf 475 K	129
7.6 Chlormonoxid Meßergebnisse im Winter 2000	130
7.7 Vom RAM beobachteter Ozonabbau im Winter 2000	131
7.8 Der Winter 2000 im Vergleich zum ASUR Instrument	133
7.9 Chloraktivierung im Winter 2000 im Vergleich zu SLIMCAT	136
7.10 Vier Tage im Detailvergleich mit SLIMCAT	137
7.11 Potentielle PSC Fläche im Winter 2000 auf 550 K	138
7.12 Der Winter 2000 im Vergleich zum ClONO <sub>2</sub> Instrument	140
7.13 Chlormonoxid Tagesgänge vom 29. Februar bis 6. März 2000	142
7.14 Chlormonoxid Tagesgang vom 2. März 2000	143
7.15 Chlormonoxid Tagesgang vom 3. März 2000 im Vergleich zum Modell SLIMCAT	144
7.16 Mittlerer Tagesgang für den Höhenbereich um 22 km	146
7.17 Mittlerer Tagesgang für den Höhenbereich um 40 km	147
7.18 Chlormonoxid Tagesgang in der oberen Stratosphäre nach Ricaud	148

7.19	Modellierung des Chlormonoxid Tagesganges in 40km Höhe	149
7.20	Der nördliche Polarwirbel für den Winter 2000/2001	150
8.1	Beispiel für Wasserdampf Referenzstrahl Spektren	155
8.2	Inversionsergebnis von Wasserdampf Referenzstrahl Spektren	159
8.3	Beispiel für Wasserdampf Totalpower Spektren	161
8.4	Helligkeitstemperatur im Vergleich zur Außentemperatur	163
8.5	Inversionsergebnis von drei Wasserdampf Totalpower-Spektren	164
8.6	Inversionsergebnis eines mittleren Wasserdampf Totalpower-Spektrums	166
8.7	Stehwellen auf den Totalpowerspektren	168
8.8	Residuum einer Totalpower Inversion	169
10.1	Karte von Grönland mit Summit	179
10.2	Karte des nördlichen Südamerika mit Mérida	180
B.1	Statistik über die Variation von Signalwinkel und Differenzspektrum	195
B.2	Meßspektrum und Kammgeneratorspektrum	196
D.1	Quasioptik des Wasserdampf Radiometers	201
D.2	Elektronik des Wasserdampf Radiometers	201
E.1	Symbole von Mikrowellenkomponenten	205
F.1	Sonnenstandsdiagramm für Ny-Ålesund	207

# Tabellenverzeichnis

3.1	Mögliche Standorte für ein neues 278 GHz Radiometer	53
6.1	Stehwellen beim Chlormonoxid Radiometer von 1997 bis 2001	96
6.2	Stehwellen beim Wasserdampf Radiometer von 1999 bis 2001	102
7.1	Kriterien für den Ausschluß von Frames in der ClO Auswertung	120
7.2	Kriterien für Tag- und Nachtspektren beim ClO	121
A.1	Programme der Chlormonoxid Auswertung	187
A.2	Programme der Wasserdampf Auswertung	189
C.1	Spektroskopische Parameter der 22 GHz Wasserdampf Linie	197
C.2	Spektroskopische Parameter der 204 GHz Chlormonoxid Linie	198
D.1	Technische Daten des Wasserdampf- und Chlormonoxid Radiometers	199
D.2	Technische Daten des Spektrometers	200
D.3	Datum und Art von technischen Änderungen	200
D.4	Informationen zur Wasserdampf Quasioptik	200
D.5	Bauelemente des Wasserdampf Radiometers Teil I	202
D.5	Bauelemente des Wasserdampf Radiometers Teil II	203
D.6	Housekeeping Daten des RAM	203
D.7	Opazitäten der verwendeten Plexiglas Platten	204
F.1	Die wichtigsten statistischen Datumsangaben zu Ny-Ålesund	208

## Abstract

The »Radiometer for Atmospheric Measurements« (RAM) is a passive microwave radiometer which measures the rotational emission lines of water vapor at 22, ozone at 142 and chlorine monoxide at 204 GHz. It is jointly operated by the »Institute of Environmental Physics« of the »University of Bremen« and the »Alfred-Wegener-Institute for Polar and Marine Research«. As part of the »Network for the Detection of Stratospheric Change« (NDSC) the RAM is situated in Ny-Ålesund at 79° North at the Spitsbergen archipelago. This location is special, because in arctic winter it mostly lies under the polar vortex which is essential for the measurement of chlorine activation and therefore the observation of ozone depletion.

Since the designation of heterogeneous chemistry as basic cause for the Antarctic ozone hole the observation of stratospheric chlorine monoxide is more important than ever. The RAM is the only instrument in the Arctic for long term monitoring of this crucial species. Within the scope of this work several improvements have been made on the instrument's hard- and software. We will show measurements of stratospheric chlorine monoxide from 2000 which have been analyzed with a newly implemented retrieval software. In this context we will show measured diurnal chlorine monoxide cycles as well as the comparison to other instruments and models.

As tracer for global warming and participant in catalytic ozone depletion water vapor is an important species for atmospheric physics. In the last decades stratospheric water vapor has increased noticeably in lower stratosphere which not can be explained by current theories. Because of this reason we have installed a new water vapor radiometer as third frontend of the RAM in January 1999. In this work we will present the technical realization of the instrument, the water vapor retrieval software as well as some evaluated measurements.

Tropospheric water vapor is also a disturbing factor to microwave measurements. It weakens the emission lines and therefore limitates their observation. In this work we have inspected several sites for their suitability as location of a newly planned 278 GHz chlorine monoxide radiometer. As result we discovered Summit in Greenland and Mérida in Venezuela as ideal places which eventually lead to the installation of two new instruments.

## Vorwort

Seitdem sich die Menschen niedergelassen haben nehmen sie beständig Einfluß auf ihre unmittelbare Umwelt. Beginnend mit dem Bau des ersten Kanals zwischen Nil und rotem Meer, der künstlichen Bewässerung des Zweistromlandes oder dem Anbau von Reis im alten China – alles Ereignisse die sich schon Jahrtausende vor der Zeitenwende zugetragen haben – bis in die Neuzeit mit großflächigen Brandrodungen, der industriellen Massenproduktion von Nahrung und Wirtschaftsgütern oder dem globalen Verkehr der auf der Verbrennung von Erdöl basiert, hat sich der moderne Mensch weit entwickelt.

Früher war der menschliche Einfluß in der Tat nur lokal begrenzt und wirkte sich zudem nur über kurze Zeiträume aus; heute leben wir in einer globalisierten Welt und müssen in Jahrhunderten rechnen – etwas, das weit über den Horizont von Politikern, die nur in Legislaturperioden planen können, hinausgeht.

Dabei überschlagen sich die Massenmedien förmlich mit Berichten über Naturkatastrophen und es gibt kaum einen Menschen in der vermeintlich gut informierten westlichen Welt, der noch nichts von dem Ozonloch, El Niño oder dem Treibhauseffekt gehört hat. Manche Propheten der Apokalypse weissagen uns ein Zusammenbrechen des Golfstromes und damit eine neue Eiszeit, andere wiederum sprechen von tropischen Temperaturen in Mitteleuropa und einem veröden der äquatorialen Zone.

Tatsächlich gibt es Veränderungen, die mit höchster Wahrscheinlichkeit auf das Wirken der Menschen zurückzuführen sind – so ist das Ozonloch eine Folge der Verwendung von Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffen wie in Kapitel 2 noch gezeigt wird. Aber ob der vermehrte Hautkrebs in Australien eine physikalische Folge des Ozonlochs oder eine soziologische Folge der veränderten Freizeitgewohnheiten ist, bleibt damit immer noch offen. Auch El Niño ist kein Kind der Neuzeit – schon 1525, lange vor der »Erfindung« von Minute und Grad Celsius und damit der exakten Wahrnehmung kleinster atmosphärischer Veränderungen, wurden seine Auswirkungen von einer Expedition unter Lei-

tung Francisco Pizarros beschrieben. Wenn heute bei einer Schlammlawine in Peru so viele Menschen ums Leben kommen, liegt das vielleicht weniger an einem stärkeren El Niño als vielmehr daran, daß die ärmsten der Menschen gezwungen wurden, selbst die gefährlichsten Plätze dicht zu besiedeln. Und ist der Treibhauseffekt tatsächlich eine unabwendbare Folge der menschlichen Zivilisation? Oder sind die beobachteten Veränderungen vielleicht doch nur eine größere Schwankung in der ohnehin großen Dynamik, der die Welt unterworfen ist? Denn wo vor nicht einmal zwei Jahrtausenden die Maya siedelten, wuchert heute ein undurchdringlicher Dschungel; wo sich vor 7.000 Jahren noch eine grüne Savanne ausbreitete befindet sich seit der Zeitenwende das Sandmeer der Sahara; wo vor 10.000 Jahren noch eine fruchtbare Ebene war, steht heute 20 Meter tief das Wasser der Nordsee.

Was von all den prognostizierten Szenarien ist also die Wahrheit, was eine vielleicht sogar kalkulierte Unwahrheit? Zwischen den Meinungen der verschiedenen Wissenschaftler sitzen die ratlosen Menschen und erwarten Antworten. In der Tat ist es die Aufgabe und Pflicht der Wissenschaft, den Menschen die mögliche Zukunft zu zeigen, so daß diese für sich die richtigen Entscheidungen treffen können – aber es sollten Zukunftsperspektiven sein, die wissenschaftlichen und nicht populistischen Ansprüchen genügen. Damit die Wissenschaftler diese Aufgabe glaubwürdig erfüllen können, brauchen sie vertrauenswürdige Daten. Mithelfen, diese Daten zur Verfügung zu stellen, war die Motivation für diese Arbeit.

Kai Lindner  
Bremen im Dezember 2001

# Einleitung

Wie in dieser Arbeit noch ausführlich dargestellt wird, spielt das Geschehen in der Stratosphäre für die Atmosphärenphysik eine entscheidende Rolle. Für die Beurteilung der zukünftigen Entwicklung des Klimas mittels Modellen werden zahlreiche, voneinander unabhängige Datensätze benötigt. Das »Monitoring« von Veränderungen, die sich über längere Zeiträume hinweg ergeben, ist dabei von besonderer Bedeutung.

Das »Network for the Detection of Stratospheric Change« (abgekürzt NDSC) ist ein Zusammenschluß zahlreicher Forschungsstationen, die über die ganze Welt verteilt sind – siehe dazu auch Abbildung 1. Vertreten sind Meßinstrumente der verschiedensten Typen, wie zum Beispiel Mikrowellenradiometer, LIDAR oder Dobson Spektrometer, aber auch in-situ Geräte wie Ballonsonden. Ziel dieses globalen Netzwerkes ist die Beobachtung der Stratosphäre und dabei insbesondere der für das Leben wichtigen Ozonschicht. Besonderes Augenmerk wird dabei auf die zum größeren Verständnis notwendigen Spurengas-Spezies wie Ozon und Chlormonoxid gelegt. Die Ergebnisse werden verwendet, um die vorhandenen chemischen und dynamischen Modelle zu verbessern sowie zur Validierung auf Satelliten fliegender neuer Instrumente.

Nach dem kanadischen Eureka ist Ny-Ålesund, das bei  $78^{\circ}55'$  Nord und  $11^{\circ}55'$  Ost auf dem Spitzbergen Archipel liegt, der zweit nördlichste Standort des NDSC – siehe dazu Abbildung 2. Es handelt sich um ein kleines Dorf von etwa 25 bis 250 Einwohnern (je nach Jahreszeit befinden sich dort mehr oder weniger viele Wissenschaftler) welches sich im Besitz der »Kingsbay Kull Kompanie AS« befindet. Diese staatlich norwegische Firma stellt Wissenschaftlern aus aller Welt eine hervorragende Infrastruktur für ihre Forschungen zur Verfügung. Im Sommer sind es hauptsächlich Biologen, die in den Tiefen des Kongsfjords die arktische Meeresflora untersuchen; im Winter befindet sich der Ort zumeist innerhalb des nördlichen Polarwirbels und wird daher von Physikern und Meteorologen als Basis für ihre Forschungen verwendet.

Das »Alfred-Wegener-Institut für Polar und Meeresforschung« (kurz AWI)

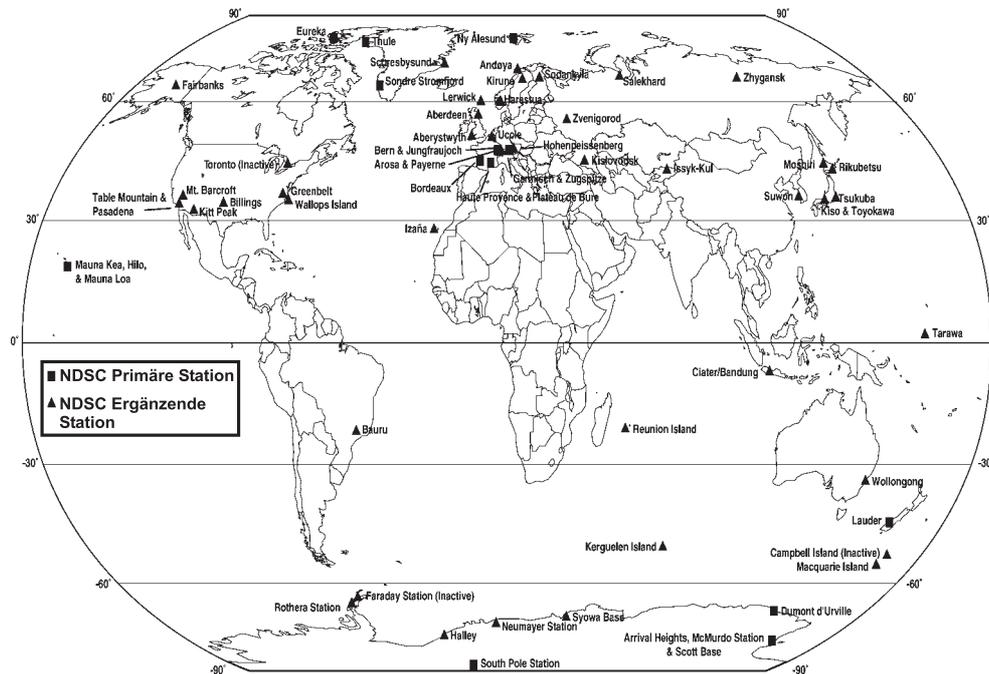


Abbildung 1: Karte mit den über die ganze Welt verteilten NDSC Stationen auf dem Stand von Ende 2000. Quadrate bezeichnen die primären Stationen an denen sich üblicherweise mehrere Meßgeräte verschiedenen Typs befinden, Dreiecke die ergänzenden Stationen mit üblicherweise nur einem Meßgerät.

unterhält in Ny-Ålesund mit der Koldewey Station das deutsche Forschungszentrum in der arktischen Region. Ein Stationsleiter für die Logistik sowie ein Stationsingenieur zur Betreuung der technischen Geräte sind permanent anwesend. Unter anderem gehört auch das Gebäude des NDSC Observatoriums zur Koldewey-Station – siehe dazu Abbildung 3. In ihm befindet sich das in dieser Arbeit verwendete »Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen« (oder auch »Radiometer for Atmospheric Measurements« kurz RAM) das vom »Institut für Umwelphysik« (kurz IUP) der »Universität Bremen« gebaut und in Zusammenarbeit mit dem AWI unterhalten wird. Das Gerät zur Bestimmung stratosphärischen Ozons befindet sich seit 1992 im Dauer-Meßbetrieb; im Laufe der Zeit wurde es auf die Detektion von Chlormonoxid und Wasserdampf erweitert.

Diese Arbeit ist in drei Teile untergliedert. Im ersten Teil der die Kapitel eins bis drei umfaßt geht es um die Grundlagen der Atmosphärenphysik. Das erste Kapitel gibt dabei eine kurze Einleitung in den Aufbau und die Dynamik

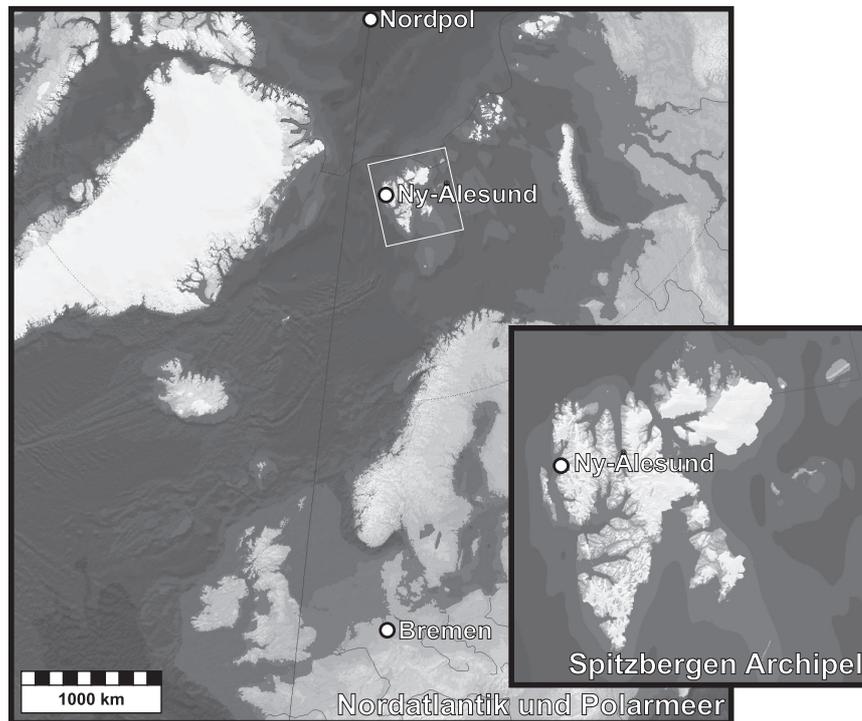


Abbildung 2: Eine Karte des Nordatlantiks und der arktischen Region; die Standorte des Instituts für Umweltphysik in Bremen und der Ort Ny-Ålesund sind markiert. Der Ausschnitt zeigt detailliert den Spitzbergen Archipel mit Ny-Ålesund, das sich an dessen westlichem Ende bei  $78^\circ$  Nord und  $11^\circ$  Ost auf der Brøgger-Halbinsel am Kongsfjord befindet. Karte aus dem Encarta Weltatlas (1999).

der Erdatmosphäre. Hierbei werden insbesondere einige Begriffe eingeführt und erklärt, die im Kontext der Arbeit von Bedeutung sind. Das zweite Kapitel behandelt den Einfluß, den Chlormonoxid in der mittleren Atmosphäre hat; in diesem Zusammenhang geht es um die katalytischen und heterogenen chemischen Prozesse, an denen Chlor beteiligt ist und die zu einem Ozonabbau führen, mit einem kurzen Blick auf seine Herkunft und die zukünftige Entwicklung. Das dritte Kapitel schließlich behandelt den atmosphärischen Wasserdampf, seine Dynamik und Verteilung sowie den Einfluß, den es auf das Weltklima nimmt. Abgeschlossen wird das Kapitel mit der Untersuchung mehrerer Forschungsstationen auf ihre Tauglichkeit als Standort für ein neues Radiometer, wobei sich insbesondere der troposphärische Wasserdampf als der limitierende Einfluß zeigt.

Der zweite Teil dieser Arbeit behandelt die passive Mikrowellenradiome-



Abbildung 3: Ein Bild des NDSC Observatoriums in dem sich das RAM Laboratorium mit dem in dieser Arbeit verwendeten Meßgerät befindet. Das NDSC Observatorium ist ein Teil der deutschen arktischen Forschungsstation, die vom Alfred-Wegener-Institut für Polar und Meeresforschung unterhalten wird.

trie<sup>1</sup>, er umfaßt die Kapitel vier bis sechs. Im vierten Kapitel geht es um die Grundlagen der Radiometrie. Beschrieben werden die charakteristischen Eigenschaften der Meßsysteme, die verwendeten Meßverfahren wie die Total-Power oder die Referenzstrahl Methode, die verwendeten Beobachtungsgeometrien sowie die auftretenden Probleme. Das fünfte Kapitel behandelt die atmosphärische Mikrowellenstrahlung; dabei geht es insbesondere um die Entstehung der Spektrallinien, den Strahlungstransfer durch die Atmosphäre, sowie die verschiedenen Einflüsse auf die Linienform. Gezeigt wird, wie man mit Hilfe dieser Informationen durch mathematische Verfahren aus einem gemessenen Spektrum auf die Höhenverteilung des zugrundeliegenden Spurengases schließen kann. Im sechsten Kapitel werden schließlich die technischen Rea-

---

<sup>1</sup> Eigentlich wäre es passender von Millimeterwellen zu sprechen, da die in dieser Arbeit verwendeten Meßgeräte mit Wellenlängen von 1,5 mm beziehungsweise 13,5 mm arbeiten. Die entsprechende Technik umfaßt aber den Frequenzbereich von Giga- bis Terahertz und wird im angelsächsischen Sprachraum allgemein mit »Microwave Radiometry« bezeichnet. Aus Konsistenzgründen wird daher in dieser Arbeit ebenfalls durchweg der Begriff Mikrowellen verwendet.

lisierungen der verwendeten Meßgeräte vorgestellt; insbesondere die in den Jahren 1999 bis 2001 durchgeführten technischen Änderungen, sowie das im Rahmen dieser Arbeit neu implementierte Steuerungsprogramm werden kurz beschrieben.

Im dritten und letzten Teil der Arbeit werden die Ergebnisse der in Ny-Ålesund durchgeführten Messungen vorgestellt; er umfaßt die Kapitel sieben bis zehn. Im siebten Kapitel geht es um die im Winter 1999/2000 durchgeführten Chlormonoxidmessungen. Beschrieben wird die dazu neu implementierte Auswertung sowie die Ergebnisse im Vergleich zu anderen Meßgeräten und Modellen. Im achten Kapitel werden die Ergebnisse der Wasserdampfmessungen gezeigt – wiederum mit einem Blick auf die Details der Auswertung, wobei insbesondere die radiometrischen Meßverfahren genauer betrachtet werden sollen. Die Kapitel neun und zehn schließlich beinhalten eine Zusammenfassung aller Ergebnisse und einen Ausblick auf die weiteren Möglichkeiten, die im Rahmen einer Fortsetzung dieser Arbeit noch geleistet werden könnten.

Dem Haupttext folgt ein ausführlicher Anhang. In ihm befinden sich eine Auflistung der verwendeten Programme der Auswertung, die Beschreibungen spezieller Problemlösungen, weitere technische Daten die insbesondere den Aufbau des Wasserdampf Radiometers betreffen, eine Auflistung der verwendeten Radiometersymbole und Abkürzungen, ein Glossar der wichtigsten in der Arbeit vorkommenden Begriffe sowie die Bibliographie.



**Teil I**

# **Grundlagen der Atmosphärenphysik**



# 1 Die Atmosphäre der Erde

In diesem Kapitel soll eine kurze Einleitung in den Aufbau und die Dynamik der irdischen Atmosphäre gegeben werden, dabei sollen einige Begriffe eingeführt und erklärt werden, die im Kontext dieser Arbeit noch von Bedeutung sein werden. Sofern nicht anders angegeben entstammt der Inhalt dieses Kapitels aus Graedel und Crutzen (1994), Kraus (2000) Roedel (1994) und Salby (1996).

## 1.1 Zusammensetzung und Vertikalstruktur

Die Atmosphäre der Erde besteht zum überwiegenden Anteil aus drei Gasen: Stickstoff mit 78, Sauerstoff mit 21 und Argon mit knapp einem Volumenprozent. Alle weiteren Bestandteile sind Aerosole und Spurengase, deren Volumenmischungsverhältnisse man üblicherweise in ppmv (parts per million = 1 Teil auf  $10^6$  Teile) beziehungsweise ppbv (parts per billion = 1 Teil auf  $10^9$  Teile) angegeben werden. Trotz der sehr geringen Konzentrationen haben Spurengase wie Wasserdampf, Ozon, Methan und Chlormonoxid durchaus erkennbare Einflüsse auf die Atmosphäre und dadurch auch auf das Klima.

Das Volumenmischungsverhältnis (englisch »Volume Mixing Ratio« daher abgekürzt mit VMR, oftmals auch »Molbruch« genannt) definiert sich gemäß

$$\mu_S = \frac{n_S}{n_G} \quad (1.1)$$

und ist der Quotient der Teilchenzahlen des Spurengases  $n_S$  und des gesamten Gases  $n_G$ , jeweils angegeben in Molekülen je Volumeneinheit. Von Vorteil ist das VMR, da es eine Größe ist, die Aussagen über die möglichen chemischen Reaktionsprozesse machen kann und die zudem, wenn keine chemischen Reaktionen eintreten, beim Transport eines Luftpaketes erhalten bleibt.

Ebenfalls gebräuchlich ist die Angabe der Säulenhöhe eines Gases. Dabei

handelt es sich um die Höhe einer Säule, die ein Gas unter Normalbedingungen (Bodendruck bei 0°C) erreichen würde. Während die Gesamtsäule der Atmosphäre etwa 8 km hoch wäre, hätte die Säule von Ozon bei dieser Betrachtungsweise gerade mal eine Höhe von 3,5 mm. Die Ozonsäule wird üblicherweise in Dobson Einheiten (abgekürzt DU, von englisch »Dobson Unit«) angegeben, wobei 1000 DU einer Totalozonsäule von einem Zentimeter entspricht.

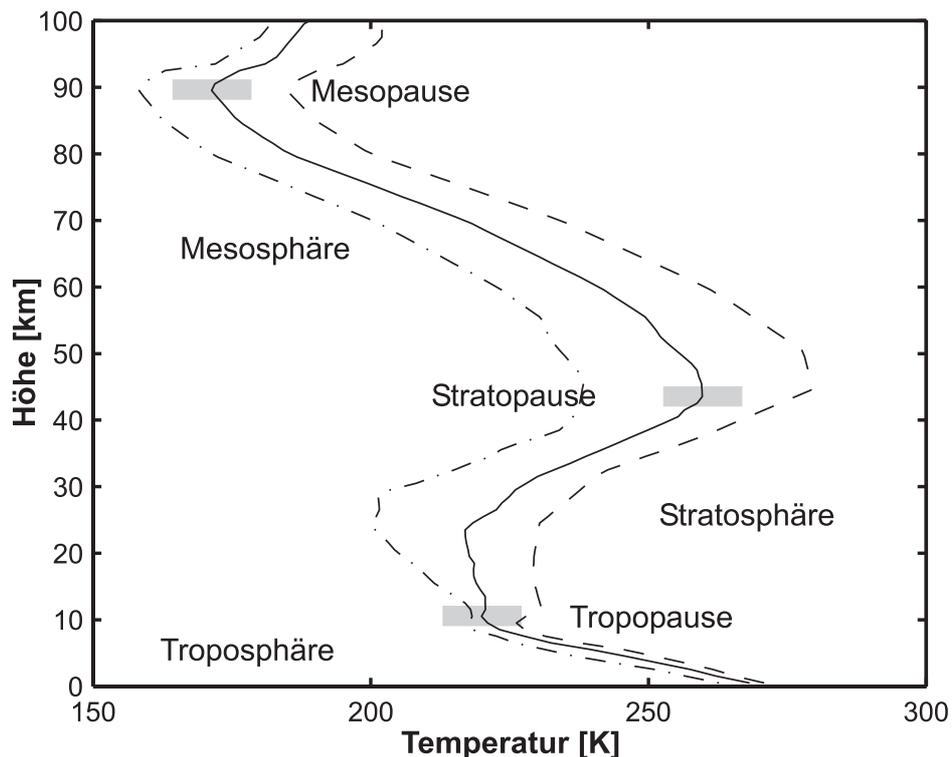


Abbildung 1.1: Beispielhaft das Temperaturprofil über unserem Beobachtungsstandort Ny-Ålesund (79° Nord, 15° Ost). Die durchgezogene Linie ist das Jahresmittel für das Jahr 2000, strichpunktiert das Monatsmittel für Dezember 2000 und gestrichelt das Monatsmittel für Juni 2000. Man erkennt deutlich die innerjährliche Variation der Temperatur. Die Tropopause befindet sich in einer Höhe, in welcher der Gradient der Temperatur in einen ersten konstanten Anstieg übergeht – er ist im Winter nur schwer zu erkennen (Berechnet aus Daten des ECMWF).

Die vertikale Strukturierung der Atmosphäre wird durch ihren Temperaturgradienten definiert, der sich aus der Wechselwirkung von solarer Einstrahlung, den beteiligten atmosphärischen Gasen und speziellen Eigenschaften des

Planeten ergibt. Ein Temperaturprofil für unseren Beobachtungsstandort Ny-Ålesund ist dazu in Abbildung 1.1 exemplarisch dargestellt.

Strahlung im Wellenlängenbereich von 400 bis 800 nm kann nahezu ungehindert die Atmosphäre durchdringen und den Erdboden erhitzen. Die indirekt über den Erdboden erwärmte Luft steigt auf und kühlt sich aufgrund der Expansion durch die Druckabnahme mit der Höhe adiabatisch ab. Zusätzlich führt die hauptsächlich durch Wasserdampf emittierte Infrarotstrahlung zu einer weiteren Abkühlung, die in der Tropopause genannten Höhenschicht zu einem Temperaturminimum führt. Der Höhenbereich unterhalb der Tropopause wird Troposphäre genannt und ist dadurch gekennzeichnet, daß er einen negativen Temperaturgradienten von etwa 6 K je Kilometer besitzt. Fast das gesamte Wettergeschehen findet innerhalb der Troposphäre statt. Durch das Aufsteigen von Luftpaketen besitzt sie eine hohe Dynamik und weist damit eine gute Durchmischung auf.

Die Höhe und Temperatur der Tropopause ist stark vom Wasserdampfgehalt der Luft abhängig. In polaren und mittleren Breiten hat sie eine Höhe von 8 bis 13 km mit einer Temperatur von etwa 220 K. In den Tropen und am Äquator, wo viel größere Wassermassen verdunsten, erreicht sie eine Höhe von bis zu 18 km mit Temperaturen von etwa 195 K. Die im Winter niedrigeren Oberflächentemperaturen führen dazu, daß die Tropopause in dieser Jahreszeit bis zu 2 km tiefer liegt als im Sommer. Nahezu der gesamte Wasserdampf der Atmosphäre befindet sich unterhalb der Tropopause.

Der Höhenbereich über der Tropopause ist die Stratosphäre. In der unteren Stratosphäre herrscht ein Gleichgewicht zwischen infraroter Abstrahlung und der solaren Erwärmung (die hauptsächlich hervorgerufen wird von der Absorption ultravioletter Strahlung durch Ozon, siehe dazu ausführlicher noch den Abschnitt 2.1); in der mittleren und oberen Stratosphäre überwiegt die Absorption, was zu einer Zunahme der Temperatur von etwa 2 K je Kilometer führt. In der Stratosphäre finden die wichtigsten photochemischen Prozesse statt, über die in den folgenden Kapiteln noch ausführlicher berichtet wird. Der positive Temperaturgradient verhindert das Aufsteigen von Luftpaketen und führt damit zu einer stabilen Schichtung. Die Stratosphäre erstreckt sich bis in eine Höhe von etwa 50 km und wird dort von der Stratopause begrenzt, die sich wiederum durch eine Umkehr des Temperaturgradienten auszeichnet.

Über der Stratopause befindet sich die Mesosphäre mit einem durch Strahlungskühlung verursachten negativen Temperaturgradienten. Sie erstreckt sich

bis zur Mesopause in einer Höhe von etwa 80 km mit Temperaturen von etwa 170 K. Über der Mesopause schließen sich die Thermosphäre, Ionosphäre, Magnetosphäre, Exosphäre und schließlich der extraterrestrische Raum an.

Während die Temperatur mit der Höhe keinem einfach berechenbaren Formalismus folgt, fällt der Druck als zweite wichtige atmosphärische Vertikaleigenschaft mit der Höhe exponentiell ab. Er gehorcht dabei der Barometrischen Höhenformel:

$$p(z) = p_0 \cdot \exp \left[ -\frac{M \cdot g}{R \cdot T} \cdot z \right] \quad (1.2)$$

mit  $g$  der Erdbeschleunigung,  $M$  der mittleren Molmasse von Luft (etwa 29 g/mol),  $p_0$  dem Luftdruck am Boden,  $R$  der universellen Gaskonstante,  $T$  der mittleren Temperatur und  $z$  der Höhe über dem Erdboden). Der Druck fällt je 15 km auf etwa 10% des Ursprungswertes ab. Es folgt also, daß sich in den unteren 15 km der Atmosphäre 90% der atmosphärischen Masse befindet.

Sofern man ein Luftpaket adiabatisch (ohne Energieaustausch mit der Umgebung) von einem Luftdruck  $p$  auf den Referenzdruck am Boden  $p_0$  von etwa 1000 hPa bringt, steigt dessen potentielle Temperatur  $\theta$  gemäß folgender Formel:

$$\theta = T \cdot \left( \frac{p_0}{p} \right)^\kappa \quad \text{mit} \quad \kappa = \frac{R}{c_p} \quad (1.3)$$

Dabei ist  $T$  die mittlere Temperatur des Luftpaketes am Ursprungsort,  $c_p$  die spezifische Wärme der Luft bei konstantem Druck, womit sich  $\kappa$  zu etwa 2/7 ergibt. Adiabatische Prozesse laufen damit per Definition auf Flächen konstanter potentieller Temperatur – den sogenannten Isentropen – ab. Da Luftmassenbewegungen in der Stratosphäre im Zeitrahmen einiger Tage adiabatisch sind, ist die potentielle Temperatur eine wichtige Erhaltungsgröße anhand derer man Luftmassen identifizieren kann. In der stabil geschichteten Stratosphäre nimmt die potentielle Temperatur konstant mit der Höhe zu, weshalb sie auch als Höhenangabe verwendet werden kann – der Isentrope mit 475 K entspricht (im Winter) einer Höhe von etwa 20 km.

## 1.2 Dynamik und Transportprozesse

Die antreibende Kraft der atmosphärischen Dynamik ist die Absorption solarer Energie auf der Erdoberfläche. Insbesondere die großen Einstrahlungsunterschiede zwischen den tropischen und den polaren Breiten führen nach Holton et al. (1995) zur Ausbildung der »globalen meridionalen Zirkulation« (in einem vereinfachten Modell auch als »Brewer-Dobson Zirkulation« bekannt) wie sie in Abbildung 1.2 schematisch dargestellt ist.

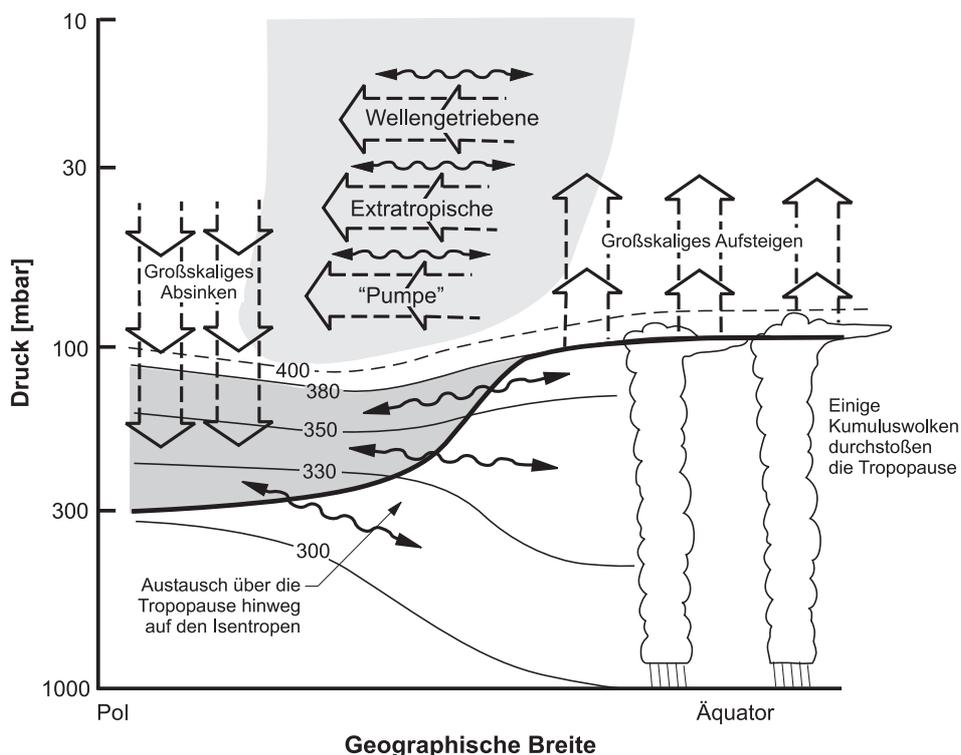


Abbildung 1.2: Die globale meridionale Zirkulation nach Holton et al. (1995). Großskaliges Aufsteigen von Luftmassen in äquatorialen und Absinken in polaren Breiten führt angetrieben durch die »Wellengetriebene Extratropische Pumpe« zu einem Massentransport vom Äquator zum Pol. Zusätzlich findet in subpolaren Breiten ein Austausch auf den Isentropen statt. Die dicke Linie bezeichnet die Tropopause, die dünnen Linien die Isentropen.

Dabei gibt es durch die Erwärmung und damit verbundene Volumenvergrößerung in den Tropen ein großskaliges Aufsteigen von Luftmassen und damit eine Anhebung der Isobaren, der Tropopause und damit der darüberliegenden

Stratosphäre. Gleichzeitig führt das Abkühlen an den Polen zu einem großskaligen Absinken von Luftmassen und der Isobaren. Entsprechend dem Luftdruckgefälle und verstärkt durch planetare Wellen (der »Wellengetriebenen Extratropischen Pumpe«) ergibt sich in großen Höhen ein Massentransport vom Äquator zu den Polen, dem in niedrigen Höhen Luftströmungen von den Polen zum Äquator entgegengesetzt sind. Dieses führt in polaren und subpolaren Breiten auf den Isentropen zu einem Austausch von Luftmassen zwischen Troposphäre und Stratosphäre. Dem Prozeß der meridionalen Zirkulation ist die Corioliskraft durch die Erdrotation überlagert, was zusätzlich zu zonalen Strömungen führt. Die zonalen Windgeschwindigkeiten sind dabei weitaus größer als die der meridionalen Zirkulation.

### 1.3 Polarwirbel

Insbesondere im polaren Winter ohne direkte Sonneneinstrahlung und damit sehr tiefen Temperaturen entsteht durch das Absinken der Luftmassen über den Polen ein Tiefdruckgebiet. Durch die in den nördlichen subpolaren Breiten im Winter westlich verlaufenden zonalen Strömungen wird dieses Tiefdruckgebiet effizient von den äußeren Luftmassen abgetrennt und es entsteht in der Stratosphäre der sogenannte Polarwirbel (im Englischen »Polar Vortex«). Die wichtigste Eigenschaft des Polarwirbels ist, daß über seinen Rand hinweg nur ein geringer Lufttransport stattfinden kann. Erst dadurch können in seinem Inneren ausreichend tiefe Temperaturen entstehen, die für einen katalytischen Ozonabbau und damit ein »Ozonloch« notwendig sind.

Der südpolare Wirbel ist weitaus stärker ausgeprägt, stabiler und weist eine größere Rotationssymmetrie auf als der des Nordens. Dieses liegt vor allem an den geographischen Gegebenheiten, denn das antarktische Hochland sorgt für eine effiziente gleichmäßige Kühlung und damit ein ausgeprägtes Tiefdruckgebiet, während die wärmeren umgebenden Wassermassen die zonalen Strömungen begünstigen.

In der arktischen Region hingegen ist das Gelände durch das mehr oder weniger stark vereiste Nordpolarmeer sowie das exzentrisch innerhalb der Polarregion gelegenen Grönlandmassiv stark gestört – gerade durch das Überströmen der grönländischen Gebirge können sich durch Schwerewellen Teile des

Wirbels, sogenannte Filamente, ablösen und bis in mittlere Breiten vordringen. Die verschiedenen Einflüsse führen dazu, daß der Wirbel sehr variabel ist und seine Position über dem Pol ständig verändert. Es gibt zudem weitere Einflüsse, die sich auf die langfristige Stabilität und damit die Existenzdauer des nördlichen Polarwirbels auswirken können. Als Beispiel sei hier die »Quasi Biennale Oszillation« genannt, eine planetare Welle mit einer Periode von 26 bis 28 Monaten, die in Übleragerung zum 11 Jahre andauernden Sonnenzyklus zu Erwärmungen in der polaren Stratosphäre führen kann – sogenannten Minor und Major Warmings (sehr ausführlich bei Baldwin et al. (2001) beschrieben). Die verschiedenen Einflüsse führen insgesamt zu einer hohen jährlichen Variabilität des Polarwirbels, der beispielsweise im Jahr 2000 sehr stark ausgeprägt war und bis Ende April noch stabil war während er im Jahre 2001 schon Ende Februar zusammenbrach (siehe dazu auch die Abbildung 1.3 beziehungsweise ausführlich die Beschreibung der klimatischen Bedingungen im Kapitel 7). Üblicherweise bildet sich der Polarwirbel gegen Ende November und bleibt bis zum April des Folgejahres bestehen.

Als nützliches Maß für die Ausprägung und Stabilität des Polarwirbels kann die potentielle Wirbelfeldstärke (englisch »Potential Vorticity«, daher hier mit PV abgekürzt) herangezogen werden. Auf einer gegebenen Isentrope ist sie

$$PV = g \cdot \frac{\partial \theta}{\partial p} \cdot \left( f_E - \frac{1}{R_E \cdot \cos(\phi)} \cdot \frac{\partial(u \cdot \cos(\phi))}{\partial \phi} + \frac{1}{R_E \cdot \cos(\phi)} \cdot \frac{\partial v}{\partial \lambda} \right) \quad (1.4)$$

mit  $f_E$  und  $R_E$  dem Coriolisparameter und Radius der Erde,  $g$  der Erdbeschleunigung,  $\theta$  der potentiellen Temperatur,  $p$  dem Druck,  $u$  und  $v$  den Winden in zonaler und meridionaler Richtung sowie  $\lambda$  und  $\phi$  der geographische Länge und Breite. Als Maßeinheit für die PV sei an dieser Stelle die PVU (vom englischen »PV Unit«) eingeführt: Eine PVU entspricht  $10^{-6} \text{ K m}^2 \text{ kg s}^{-1}$ .

Für adiabatische Prozesse ist die PV eine Erhaltungsgröße und im Bereich einiger Tage sind Änderungen der PV von Luftpaketen damit vernachlässigbar. In Verbindung mit der potentiellen Temperatur als zusätzlicher Koordinate lassen sich Luftpakete mit unterschiedlichen dynamischen Eigenschaften voneinander trennen und über längere Zeiträume hinweg beobachten.

Die Betrachtung der PV auf Isentropen (insbesondere der 475 K Isentrope) wird hier zudem verwendet um den Polarwirbel als Ganzes zu untersuchen – der innere Bereich des Wirbels ist durch eine höhere PV gekennzeichnet als

der äußere; die Grenze des Wirbels wird daher üblicherweise über die Wirbelfeldstärke definiert. Bei der von uns verwendeten Definition nach Nash et al. (1996) entspricht der Wirbelrand dem größten Gradienten der PV, in Abhängigkeit von der Fläche die von den PV Konturen eingeschlossen wird. Ein hoher Gradient bedeutet zudem, daß weniger Austausch von Luftmassen zwischen Wirbelinnerem und -äußerem stattfinden kann.

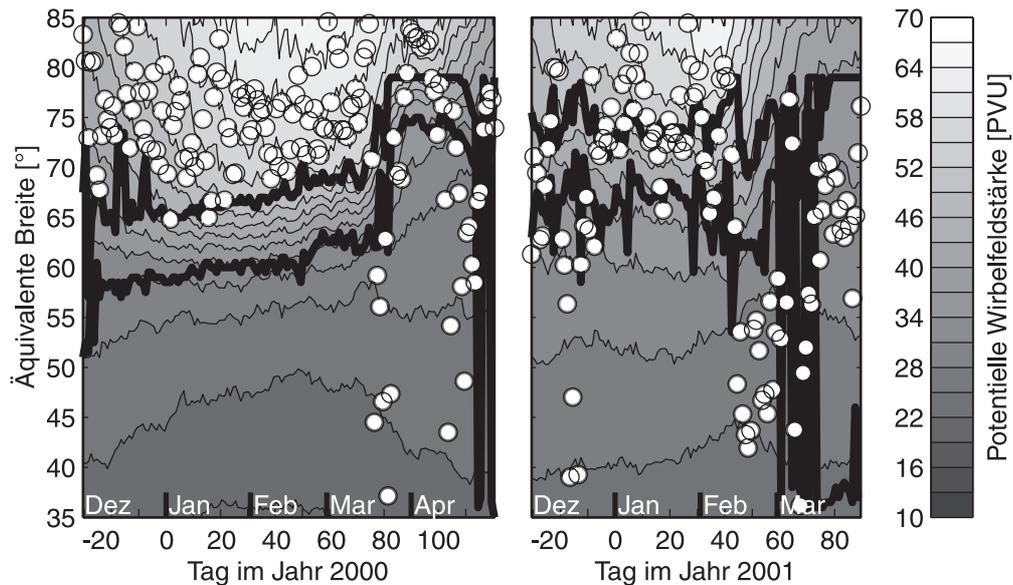


Abbildung 1.3: Der nördliche Polarwirbel für die Jahre 1999/2000 und 2000/2001, dargestellt durch die PV auf der äquivalenten Breite. Die weißen Punkte entsprechen unserem Standort Ny-Ålesund, die dicken Linien sind der innere und äußere Wirbelrand nach Nash et al. (1996). Im Jahr 2000 war der Wirbel bis zum Tag 80 sehr stabil, schrumpfte dann etwas um gegen Ende April ganz zusammenzubrechen – Ny-Ålesund befand sich mit wenigen Ausnahmen bis Mitte April im Wirbelinneren oder zumindest in dessen Randbereich. Im Jahr 2001 war der Wirbel viel variabler und brach schon Ende Februar endgültig zusammen – Ny-Ålesund lag sehr oft außerhalb oder im Randbereich um nach dem Tag 45 endgültig außerhalb zu bleiben. Mit einem hohen Gradienten im Wirbelrandbereich war der Polarwirbel im Jahr 1999/2000 generell stabiler als im Jahr 2000/2001. Siehe dazu detaillierter auch die Abbildungen 7.3 und 7.20 (Berechnet aus Daten des ECMWF).

Da der nordpolare Wirbel nicht zentrisch über dem Pol liegt sondern unsymmetrisch um ihn herum kreist soll abschließend noch die äquivalente Breite eingeführt werden. Dabei ist der Bezugspunkt des Koordinatensystems nicht der Nordpol, sondern der Mittelpunkt des Polarwirbels, wobei die von den

PV Konturen eingeschlossene Fläche als Maß für die Ausdehnung genommen wird. Von Vorteil ist, daß dadurch der Rand von zweigeteilten Wirbeln besser bestimmt werden kann, zudem läßt sich leichter definieren ob sich unser Beobachtungsstandort Ny-Ålesund innerhalb oder außerhalb des Wirbels beziehungsweise in dessen Randbereich befindet. Ein in höhere äquivalente Breiten wandernder Wirbelrand besagt, daß sich die Fläche des Wirbels verkleinert; ein stark fluktuierender Rand steht zudem für einen wenig stabilen Wirbel und kann auf dessen Zusammenbrechen hindeuten. Eine hohe Variabilität des Beobachtungsstandortes bedeutet, daß dessen Position zum Wirbelzentrum stark veränderlich ist, was auf einen unsymmetrischen Wirbel hindeutet. In Abbildung 1.3 ist exemplarisch der Polarwirbel in Werten der äquivalenten Breite für die Jahre 1999/2000 und 2000/2001 dargestellt. Berechnet wurden die PV-Zeitreihen mit dem RDF Verfahren (Abkürzung für »reverse domain filling«) nach Sutton et al. (1994) aus Daten des ECMWF.

## 1.4 Polare Stratosphärenwolken

Die besonderen klimatischen Bedingungen im Polarwirbel, die über einen langen Zeitraum sehr kalte stratosphärische Temperaturen gewährleisten, verursachen ein Naturphänomen das als polare Stratosphärenwolken (englisch »Polar Stratospheric Clouds«, daher hier mit PSC abgekürzt) – seltener auch »Perlmutterwolken« genannt – bekannt ist.

PSCs befinden sich in Höhenbereichen von 15 bis 25 km und werden in zwei Typen unterschieden. Unterhalb einer Grenztemperatur von etwa 195 K bilden sich zwei Arten von bis zu 1 µm große Partikel: Typ Ia sind feste Teilchen primär aus Salpetersäuretrihydrat ( $\text{HNO}_3 \cdot 3(\text{H}_2\text{O})$ , NAT genannt) und Schwefelsäuretetrahydrat ( $\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 4(\text{H}_2\text{O})$ , SAT genannt). Typ Ib sind Aerosole einer unterkühlten ternären Lösung aus Salpetersäure, Wasser und Schwefelsäure (STS genannt, von englisch »supercooled ternary solution«). Sinkt die Temperatur noch weiter ab und unterschreitet den Frostpunkt von Wasser (in diese Höhe etwa 187 K) bilden sich PSCs vom Typ II, die aus Eis bestehen. Diese Partikel mit einer Größe von 10 µm und mehr sind mit Salpeter- und Schwefelsäure bedeckt und können bei ausreichender Lebensdauer sedimentieren, was

in der entsprechenden Höhengschicht zu einem Verlust von  $\text{HNO}_3$  – einer »Denitrifizierung« – führt.

Für die heterogene Ozonchemie, wie sie im nächsten Kapitel dargestellt wird, ist das Verständnis über die verschiedenen Typen von polaren Stratosphärenwolken sowie deren Verhalten von großer Bedeutung. Trotz dessen sind ihre genauen Zusammensetzungen sowie die Mechanismen ihrer Entstehung und Umwandlung bis heute noch nicht ganz geklärt und Thema der aktuellen Forschung. Siehe dazu ausführlicher auch Carslaw et al. (1997) und Peter (1997).

## 2 Chlormonoxid in der Atmosphäre

Wie in der Einleitung schon angesprochen war die Klärung der Frage, ob ein nordpolares »Ozonloch« existiert einer der Kernpunkte der Atmosphärenforschung des vergangenen Jahrzehnts. Da diese Frage mittlerweile weitestgehend positiv beantwortet werden mußte geht es jetzt um die Untersuchung der genauen Einflüsse, die einen Ozonabbau begünstigen und damit die Frage, wie sich die Atmosphäre in Zukunft weiter entwickeln könnte. In diesem Zusammenhang sind die hier beschriebenen chemischen Prozesse von großem Interesse. Der katalytischen und heterogenen Chemie sowie dem Einfluß des von uns beobachteten Chlormonoxids kommt dabei eine ganz besondere Bedeutung zu. Sofern nicht anders angegeben stützt sich dieses Kapitels auf die Werke von Graedel und Crutzen (1994), Roedel (1994), Solomon (1999), Wayne (2000) und Zellner (2000).

### 2.1 Ozonchemie nach Chapman

Sidney Chapman schlug schon im Jahr 1930 (Chapman (1930)) einen reinen Sauerstoffzyklus vor, mit dem sich Produktion und Zerstörung von stratosphärischem Ozon sehr plausibel erklären läßt. Die Produktion geschieht dabei durch Photodissoziation von Sauerstoff durch UV Strahlung und der Rekombination mit  $O_2$  unter Nutzung eines Stoßpartners zur Impulserhaltung:



Aufgrund der sehr viel höheren solaren Einstrahlung in den Tropen und in mittleren Breiten ist die Ozonproduktion dort viel höher als in polaren Breiten. Die in Abschnitt 1.2 beschriebene »globale meridionale Zirkulation« sorgt jedoch für einen Transport des Ozons vom Äquator zu den Polen.

Der Ozonabbau geschieht im Chapman-Zyklus entsprechend der folgenden Reaktionsgleichungen durch thermische Dissoziation, angeregt durch Infrarotstrahlung:

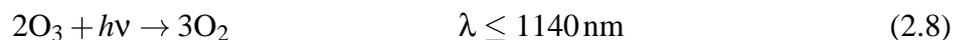
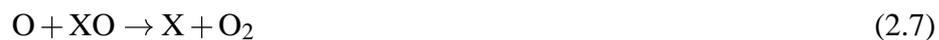
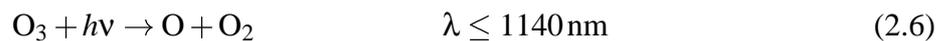


Auf seinem Weg durch die Atmosphäre wird dabei das kurzwellige UV Licht zwischen 40 und 15 km fast vollständig absorbiert. In diesem Höhenbereich stellt sich damit ein Gleichgewicht zwischen Ozonerzeugung und -abbau ein, was zur Bildung der »Ozonschicht« mit einem Konzentrationsmaximum in einer polaren Höhe von etwa 25 km führt.

## 2.2 Katalytische Chemie

Es hat sich gezeigt, daß der Ozonabbau im Chapman-Zyklus nicht ausreicht um die tatsächlich beobachteten Ozonverluste zu erklären und daß er letztlich dadurch die atmosphärische Konzentration um bis zu 30% überschätzt.

Als Lösung ergänzten Bates und Nicolet (1950) den Chapman-Zyklus durch einen katalytischen Reaktionskreislauf zur Zerstörung des Ozons:



Hierbei sind X und XO Radikale, welche die Umwandlung von O<sub>3</sub> zu O<sub>2</sub> katalysieren und mehrere tausend mal den Prozeß durchlaufen können ohne selbst verändert zu werden. Die Geschwindigkeitskonstanten der katalytischen Reaktionen liegen dabei um mehr als vier Größenordnungen über der des Chapman-Zyklus und nur die geringen Konzentrationen der Spurengase sorgen für ein stabiles Gleichgewicht zwischen Ozonerzeugung und -abbau.

Bates und Nicolet schlugen seinerzeit das Hydroxyl-Radikal (OH) und atomaren Wasserstoff als wichtige Katalysatoren vor, doch heute ist bekannt, daß

der HO<sub>x</sub> Zyklus hauptsächlich in der oberen Stratosphäre beziehungsweise unteren Mesosphäre die tragende Rolle spielt und damit weniger Einfluß auf den Ozonabbau nimmt als zuerst angenommen – weiteres dazu in Abschnitt 3.2. In Laufe der Zeit wurden weitere Spurengase entdeckt die katalytische Abbaukreisläufe bilden. Die wichtigsten sind das Stickstoffmonoxid-Radikal (NO) sowie die Halogene Brom (Br), Jod (I) und Chlor (Cl).

Gerade das Chlor hat in dem durch Stolarski und Cicerone (1974) entdeckten ClO<sub>x</sub> Kreislauf eine große Bedeutung. Denn während sich die Atmosphäre der Erde in Millionen von Jahren auf ein stabiles Gleichgewicht eingestellt hat und nur geringe Mengen von Chlor aus Vulkanausbrüchen, dem Meer oder Biomassenverbrennung in die Stratosphäre gelangt sind, haben vom Menschen verursachte Emissionen von Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffen wie CFC<sub>13</sub> oder CF<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> im vergangenen Jahrhundert großen Einfluß auf die stratosphärische Chemie genommen. Die von Molina und Rowland (1974) entdeckte Umwandlung von CFC<sub>13</sub> zu aktiven Chlorradiikalen lautet wie folgt:



Zum Glück ist nur ein kleiner Anteil der Chlorverbindungen in der Atmosphäre aktiv verfügbar. Der überwiegende Anteil ist in »Reservoirstoffen« gebunden, die nicht mit Ozon reagieren können. Die wichtigsten sind HCl und ClONO<sub>2</sub> für Chlorradikale und HNO<sub>3</sub> für Stickoxydradikale. Der Übergang in das Reservoir verläuft dabei folgendermaßen:



Aber auch die vermeintlich sicheren Reservoirstoffe können, wie weiter unten in den Gleichungen (2.15)–(2.17) gezeigt, wieder photodissoziieren und so stellt sich auch hier ein Gleichgewicht zwischen aktiven und inaktiven Radikalen ein, das im Fall der heterogenen Ozonchemie empfindlich gestört sein kann.



Für ihre Arbeiten in der atmosphärischen Chemie, insbesondere die Erkenntnisse zur Bildung und Zerstörung von Ozon erhielten Crutzen, Molina und Rowland im Jahre 1995 den Nobelpreis für Chemie.

## 2.3 Heterogene Chemie

Joseph Farman veröffentlichte 1985 (Farman et al. (1985)) einen Artikel in dem er von der Abnahme der südpolaren stratosphärischen Ozons über der Beobachtungsstation Halley-Bay berichtete. Er kam darin zu dem Erkenntnis, daß die im Frühling gemessene Totalozonsäule in den Jahren von 1975 bis 1985 von etwa 300 auf unter 200 DU abgenommen hat – das »Ozonloch« war entdeckt.

Die beobachtete Ozonabnahme ließ sich aber nicht mehr durch die bekannte Gasphasenchemie erklären und schon bald wurde durch verschiedene Gruppen (Crutzen und Arnold (1986), Solomon et al. (1986) und Toon et al. (1986)) eine viel effizientere Abbaumethode gefunden: Heterogene Reaktionen der atmosphärischen Gase an den Oberflächen von PSC Partikeln (mit heterogen bezeichnet man ganz allgemein Reaktionen, bei denen Stoffe in unterschiedlichen Aggregatzuständen beteiligt sind – hier Gas mit Eis oder Flüssigkeit). Dabei sind insbesondere Verbindungen der Katalysatoren betroffen, die sich in ihrem inaktiven Reservoir befinden. So kann auf der Oberfläche von PSCs zum Beispiel folgende Reaktion stattfinden:

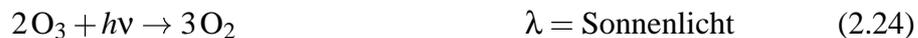


Die Reservoirgase HCl (hier gelöst in PSC Partikeln) und ClONO<sub>2</sub> (gasförmig) reagieren miteinander und setzen aktives Chlor in Form von Cl<sub>2</sub> frei. Es gibt zahlreiche dieser als »Chloraktivierung« bekannten Reaktionen, bei denen die Reservoirgase HCl und ClONO<sub>2</sub> in leicht photolysierbare Verbindungen wie Cl<sub>2</sub> oder HOCl umgewandelt werden.

Auf Eis PSCs vom Typ II laufen diese Prozesse schneller ab, als auf PSCs vom Typ I. Zudem können die größeren Eispartikel mit der Zeit sedimentieren, was zu einer Abnahme von dort gelöstem  $\text{HNO}_3$  in der Höschicht führt. Diese Denitrifizierung entfernt damit eine der wichtigsten Grundsubstanzen zur Bildung von Reservoirgasen, wodurch der Aktivierungsprozess noch effizienter wird.

In der Summe führt dieses zu einer chemischen Vorkonditionierung der Stratosphäre, die den ganzen arktischen Winter über andauert und letztendlich kann sich dadurch die Konzentration der aktiven Chlorverbindungen in der unteren Stratosphäre um mehrere Größenordnungen erhöhen. Sobald im Frühjahr in der Stratosphäre die Sonne wieder zu scheinen beginnt werden Chloratome freigesetzt und ein massiver katalytischer Ozonabbau setzt ein.

Als wichtigster von mehreren bekannten Prozessen sei hier der von Molina und Molina (1987) entdeckte ClO-Dimer Zyklus genannt:



Das Chlormonoxid-Dimer  $(\text{ClO})_2$  wird gemäß Gleichung (2.21) während des Tages photolysiert und es bilden sich ClOO sowie aktiv wirksames Chlor, das gemäß Gleichung (2.23) zum Abbau von Ozon führt, wobei gleichzeitig Chlormonoxid freigesetzt wird. Chlormonoxid ist also eine Art Marker, an dessen Konzentration sich der durch den Dimer-Zyklus verursachte Ozonabbau bestimmen läßt – eine Eigenschaft, die wir in Kapitel 7 noch ausnutzen werden. In der Nacht wird durch Gleichung (2.19) das am Tage erzeugte Chlormonoxid zurück in sein Dimer überführt.

Der Vorgang des heterogenen Ozonabbaus ist in Abbildung 2.1 noch einmal schematisch skizziert: Auf den Oberflächen von PSCs wird das in inaktiven Reservoirgasen gebundene Chlor in leicht zu photolysierende Chlorverbindungen – primär Chlormonoxid und sein Dimer<sup>1</sup> – überführt, die »Chlor-Aktivierung«

---

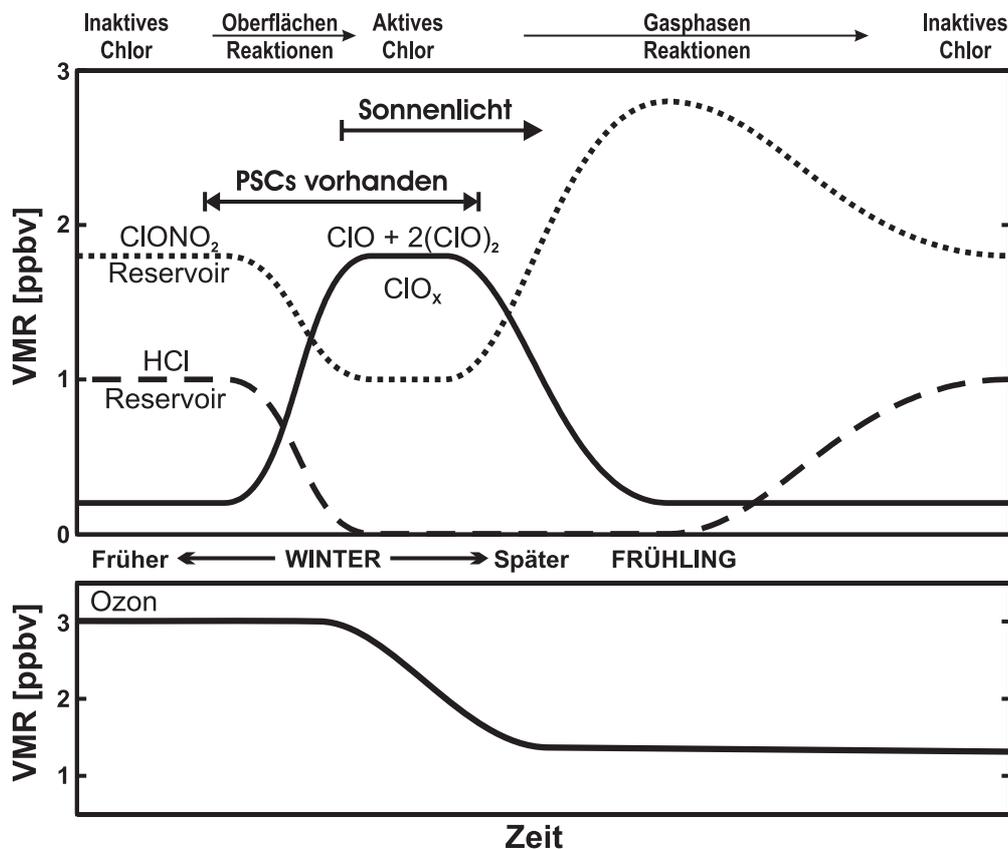


Abbildung 2.1: Eine schematische Darstellung der Aktivierung und Deaktivierung von Chlor sowie des heterogenen Ozonabbaus nach Webster et al. (1993). Im Winter wird aktives Chlor in Form von  $\text{ClO}_x$  ( $\text{ClO} + 2(\text{ClO})_2$ ) aus den Reservoirdgasen befreit und bewirkt einen Ozonabbau, der erst zum Frühling langsam ausklingt.

findet statt. Bei vorhandenem Sonnenlicht, am Ende des polaren Winters führen die Chlorradikale zu einem Abbau von Ozon. Dieser hält so lange an, bis durch die steigenden Temperaturen ausreichend viel  $\text{NO}_x$  freigesetzt wurde um das gesamte Chlor wieder in seine Reservoirdgase zu überführen. Sofern in kalten Wintern eine starke Denitrifizierung stattgefunden hat, kann der Ozonabbau bis zum Zusammenbrechen des polaren Wirbels andauern.

1 Die Summe aus  $\text{ClO} + 2(\text{ClO})_2$  wird üblicherweise als  $\text{ClO}_x$  bezeichnet und gilt als Maß für die Aktivierung von Chlor.

## 2.4 Chlormonoxid Tagesgang

Eine wichtige Eigenschaft des ClO-Dimer Zyklus ist, wie weiter oben schon angedeutet, die Ausbildung eines ausgeprägten Tagesganges in der unteren Stratosphäre. Dieser tritt in den Zeiträumen ein, in denen es in den polaren Regionen ausreichend viele Stunden an Dunkelheit und Sonnenlicht gibt. Dabei wird am Tage das Dimer photolysiert, wobei nach den Reaktionen (2.19) bis (2.23) Ozon abgebaut und Chlormonoxid erzeugt wird. In Abschnitt 7.8 werden mehrere, mit unserem Instrument gemessene Tagesgänge von Chlormonoxid gezeigt. Sie besitzen genau dieses Verhalten.

Aufgrund ihrer Geschwindigkeiten sind die entscheidenden Reaktionsgleichungen (2.19), die Selbstreaktion die zur Bildung des Dimers führt und (2.21) die bei Tageslicht stattfindende Photolyse – die thermische Dissoziation (2.20) ist ein weniger effektiver Prozeß, der vor allem bei Dunkelheit zum Tragen kommt und dafür sorgt, daß auch Nachts meßbare Restkonzentrationen von Chlormonoxid vorhanden sind.

Ändert sich der Sonnen-Zenitwinkel nur langsam, befinden sich alle beteiligten Spezies in einem photochemischen Gleichgewicht. In diesem Fall ergibt sich die Konzentration von  $(\text{ClO})_2$  zu ClO gemäß folgender Gleichung:

$$[(\text{ClO})_2] = \frac{k_{\text{Selbst}}}{2(k_{\text{Diss}} + J_{\text{Photo}})} [\text{ClO}]^2 \quad (2.25)$$

mit den  $k$  als den Reaktionskonstanten für die Selbstreaktion nach Gleichung (2.19) sowie der Dissoziation nach Gleichung (2.20),  $J_{\text{Photo}}$  der Photolysefrequenz des Dimers entsprechend Gleichung (2.21) und den Spurengaskonzentrationen in eckigen Klammern.

Bei von König (2000) wurde der Zusammenhang zwischen Chlormonoxid und seinem Dimer ausführlich anhand von Messungen und Modellrechnungen untersucht – die Ergebnisse sind in Abbildung 2.2 zusammengefaßt. Zwischen einem Sonnen-Zenitwinkel von  $95^\circ$  bis etwa  $83^\circ$  – Dämmerung bei Sonnenunter- beziehungsweise Sonnenaufgang in der Stratosphäre – steigt der ClO Gehalt schnell an. Am Tag zeigen sich starke Abhängigkeiten vom Luftdruck, der Gesamtkonzentration von  $\text{ClO}_x$  und dem stratosphärischen Temperatur, während die Ozonkonzentration kaum eine Rolle spielt.

Aufgrund der thermischen Dissoziation liegt ein Anteil des Chlors auch Nachts als Chlormonoxid vor. In Hinblick auf die Auswertung in Kapitel 7, bei der Tag- und Nacht-Spektren zur Minimierung von Geräte-Effekten vonein-

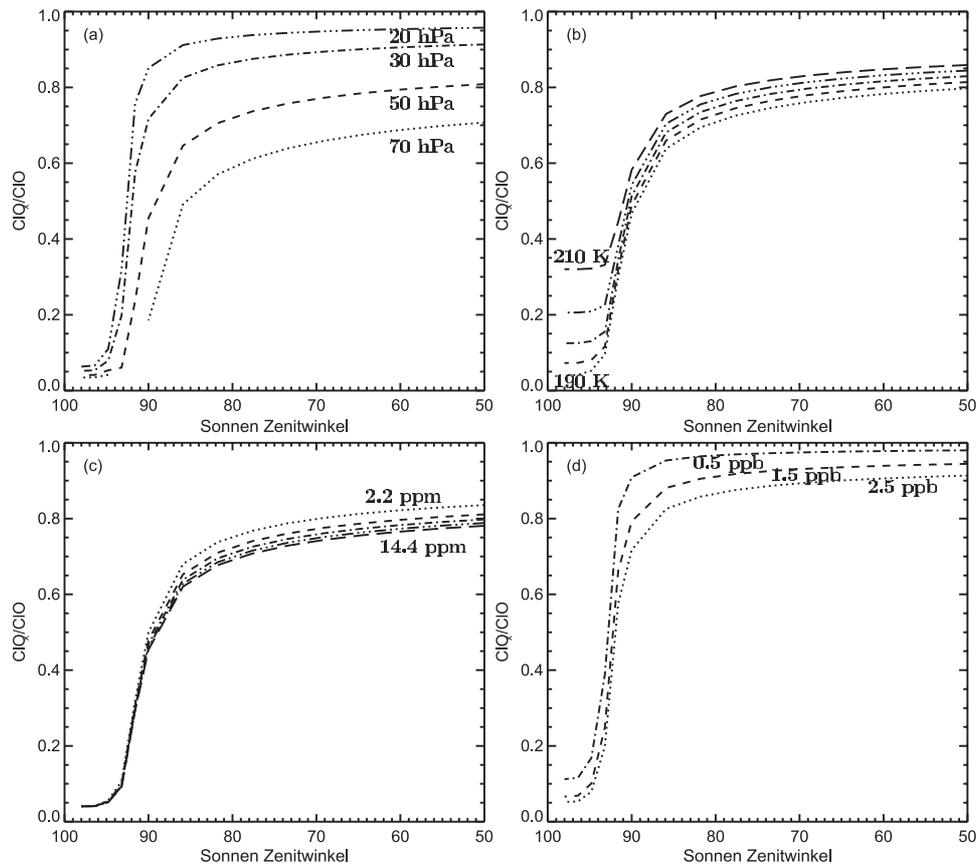


Abbildung 2.2: Ergebnisse von Modellrechnungen des Verhältnisses von Chlormonoxid zu seinem Dimer nach von König (2000). Dargestellt sind jeweils die Abhängigkeit von (a) dem Luftdruck, (b) der Temperatur, (c) der Ozonkonzentration und (d) der Konzentration von  $\text{ClO}_x$ . Jeweils aufgetragen über dem Sonnen-Zenitwinkel am Erdboden

ander abgezogen werden ist von Interesse, welche Restkonzentrationen sich dabei einstellen. Bei Raffalski (1997) wurde hierzu das nächtliche Verhalten von Chlormonoxid und seinem Dimer für den arktischen Standort Ny-Ålesund untersucht. Es stellte sich dabei heraus, daß innerhalb von etwa 3 Stunden nach Sonnenuntergang das nächtliche Gleichgewicht erreicht war; dieses jedoch immer noch eine von der Temperatur abhängige Chlormonoxid Restkonzentration bis zu 0,1 ppbv bedeutete. Das Ergebnis entsprach damit den Untersuchungen die Shindell und de Zafra (1996) für die Antarktis durchgeführt hatten, wobei die dortigen Stratosphärentemperaturen ortsbedingt im Mittel weitaus niedriger ausfallen können als in der Arktis, was dort zu einer geringeren thermischen Aktivierung von Chlormonoxid führt.

In der oberen Stratosphäre um 40km spielt der ClO-Dimer Zyklus aufgrund der höheren Temperaturen nicht mehr die entscheidende Rolle. Im Gegensatz zu der unteren Stratosphäre sind die Nachtreservoire hier  $\text{ClONO}_2$  und  $\text{HOCl}$ . Ricaud et al. (2000) zeigen, daß es aber auch hier einen ausgeprägten Tagesgang gibt. Dieser ist jedoch nicht von der Formation polarer Stratosphärenwolken abhängig.

## 2.5 Herkunft und Entwicklung atmosphärischen Chlors

Eine natürliche Quellen für Chlor sind Meersalzaerosole, die in Küstennähe durch brechende Wellen (Gischt) in die Atmosphäre gelangen. Durch Aufnahme von Schwefel- und Salpetersäure in die Aerosolpartikel kann Salzsäure entstehen. Da  $\text{HCl}$  jedoch ein sehr wasserlösliches Gas ist, ist dessen Haupteinfluß nur auf die unteren Kilometer der Troposphäre beschränkt.

Eine wichtigere Quelle ist die biologische Aktivität in Marschen und auf dem offenen Meer. Durch Seetang und Algen kann Methylchlorid ( $\text{CH}_3\text{Cl}$ ) erzeugt werden, das chemisch stabiler als Salzsäure ist und bis in die Stratosphäre gelangen kann.

Als letzte natürliche Quelle sind noch Vulkane zu nennen, die zwar sporadisch, dafür aber in großer Menge Schwefel und Chlorverbindungen sowie Partikel auf denen chemische Reaktionen stattfinden können bis hoch in die Troposphäre schleudern. Jedoch werden auch von diesen die meisten Anteile durch Regen ausgewaschen und so der Atmosphäre entzogen.

Die meisten der stratosphärischen Chlorverbindungen stammen jedoch vom Menschen und wurden seit Beginn des 20. Jahrhunderts primär in Form von Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffen (sogenannten FCKWs, im englischen CFCs) in die Atmosphäre verbracht.

Begonnen hat diese verhängnisvolle Entwicklung im Jahre 1928 mit der Synthetisierung von  $\text{CF}_2\text{Cl}_2$  (Dichlorfluormethan, CFC-12) durch Thomas Midgely; ab den 30er Jahren wurde es von DuPont unter dem Markennamen Freon als Kühlmittel vermarktet. Im Laufe der Zeit kamen weitere, im großen technischen Maßstab produzierte FCKWs wie  $\text{CCl}_4$  (CFC-10) und  $\text{CFCl}_3$  (CFC-11) hinzu. FCKWs lassen sich bei Raumtemperatur unter ge-

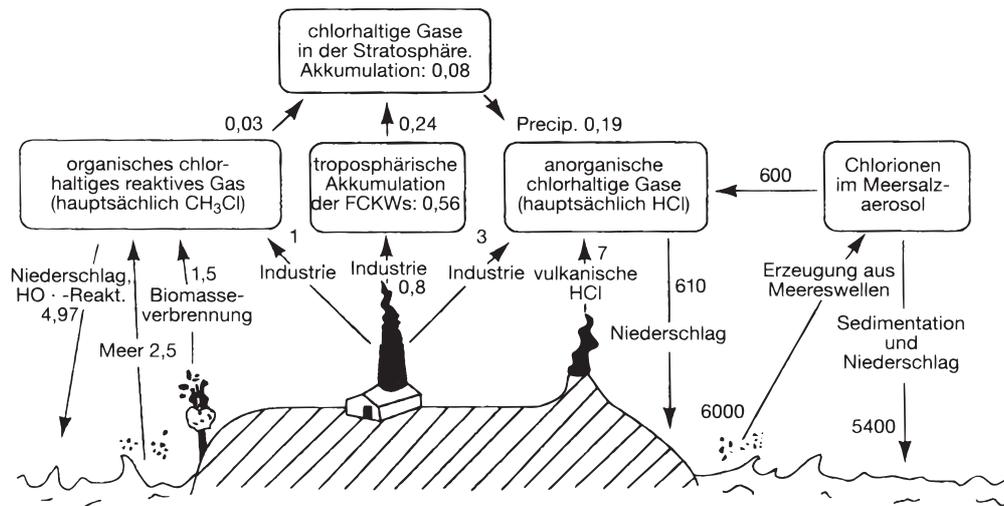


Abbildung 2.3: Der globale Chlorhaushalt, entnommen aus Graedel und Crutzen (1994). Die Einheit für die Flüsse ist  $10^{12}$  g Chlor pro Jahr und galt so bis in die 1990er Jahre – mittlerweile haben sich die Einträge für FCKSWs durch die 1997 im Abkommen von Montreal festgeschriebenen Bemühungen zum Schutz der Ozonschicht vermindert. Man muß bei dieser Abbildung noch anmerken, daß gerade die ozeanischen Flüsse nicht genau bestimmbar und diese Zahlen damit sehr fehlerbehaftet sind. Interessant ist, daß die natürlichen Flüsse in der Troposphäre um mehrere Größenordnungen über den durch Menschen gemachten liegt, wobei die hohe Stabilität der FCKWs hier natürlich die entscheidende Rolle spielt.

ringem Druck verflüssigen, weshalb sie zu den wichtigsten Trägerstoffen in Aerosol-Sprühdosen wurden – die Verwendung in Kühlanlagen machte Ende der 1970er Jahre im Vergleich dazu nur einen geringen Anteil der weltweiten Nutzung aus. Allen FCKWs ist gemein, daß sie wasserunlöslich, kaum reaktiv und damit für den Menschen ungiftig sind, was ihre gute Anwendbarkeit und damit weltweite Verbreitung erklärt. Die Stabilität der Moleküle bedeutet zudem eine große Lebensdauer – zwischen 50 und 100 Jahren. Diese ist für den Weg in die Stratosphäre von entscheidender Bedeutung, da der Transportprozeß zwischen 5 und 10 Jahren dauern kann. Wie in Abschnitt 2.2 beschrieben reicht erst in Höhenbereichen der Ozonschicht die Energie der UV Strahlung aus um die Moleküle zu photolysieren und aktives Chlor freizusetzen.

Als Ersatzstoffe wurden für die Industrie übergangsweise HFCKWs (Hydro-Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe) wie zum Beispiel  $\text{CHF}_2\text{Cl}$  (HCFC-22) oder  $\text{C}_2\text{HF}_3\text{Cl}_2$  (CFC-123) erlaubt. Diese Stoffe haben die glei-

chen positiven Eigenschaften der FCKWs, aber eine geringere Lebensdauer – dennoch besitzen auch sie ein erhebliches ozonschädliches Potential.

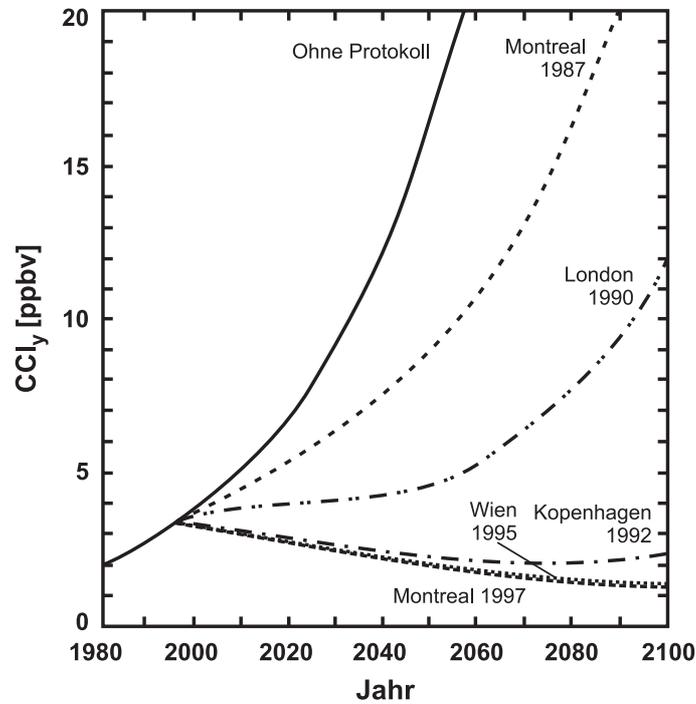


Abbildung 2.4: Die zukünftige Entwicklung des atmosphärisch aktiven Chlors gemäß der verschiedenen internationalen Protokolle zum Schutz der Ozonschicht nach Albritton und Kuijpers (1999). Sofern das aktuelle Protokoll von Montreal aus dem Jahre 1997 streng eingehalten wird, sollte gegen Mitte des 21. Jahrhunderts der Stand vom Ende der 1970er Jahre mit etwa 2 ppbv wieder erreicht werden.

Alles in allem spielen die natürlichen Chlorquellen für die Stratosphäre eine untergeordnete Rolle und machen bestenfalls ein fünftel der Gesamtmenge aus. Zur Verdeutlichung ist der globale Chlorhaushalt in Abbildung 2.3 noch einmal schematisch dargestellt.

Obwohl nicht in den polaren Breiten erzeugt und verwendet, haben Transportprozesse die FCKWs über lange Zeiträume dorthin transportiert. Messungen in der unteren südpolaren Atmosphäre haben fast gleich hohe Konzentrationen ergeben, wie in ländlichen Gebieten der Vereinigten Staaten.

Abbildung 2.4 zeigt Modellrechnungen für die zukünftige Entwicklung der atmosphärisch aktiven Chlors gemäß den verschiedenen internationalen Protokollen zum Schutz der Ozonschicht. Im ersten Protokoll von Montreal aus

dem Jahre 1987 war lediglich ein Einfrieren der aktuellen Emissionen vorgesehen. Mit dem Protokoll von London im Jahre 1990 sollte die Ausstoßrate von schädlichem Chlor zwischen 2000 und 2040 reduziert werden, es beinhaltete aber in der Summe eine nicht unerhebliche erlaubte Steigerung. Erst mit den Protokollen von Kopenhagen im Jahr 1992, Wien im Jahr 1995 und schließlich Montreal im Jahr 1997 wurden drastische Maßnahmen zur echten Verringerung von FCKWs und anderen Chlorverbindungen festgeschrieben. Sofern das aktuelle Protokoll von Montreal aus dem Jahre 1997 streng eingehalten wird, sollte gegen Mitte des 21. Jahrhunderts der Stand vom Ende der 1970er Jahre mit etwa 2 ppbv wieder erreicht werden. Tatsächlich wird in der Troposphäre schon jetzt eine deutliche Chlorabnahme entsprechend dem Protokoll von Montreal beobachtet. Für endgültige Aussagen über die Stratosphäre ist es aufgrund der lange andauernden Transportprozesse noch zu früh. Der bisherige Spitzenwert von etwa 3,5 ppbv in einer Höhe von 55 km soll zwischen 1994 (Anderson et al. (2000)) und 1997 (Waugh et al. (2001)) erreicht worden sein.

## 3 Wasserdampf in der Atmosphäre

In diesem Kapitel geht es um die Bedeutung des Wasserdampfes in der Atmosphäre. Ein besonderes Augenmerk soll dabei auf die Stratosphäre gelegt werden. Neben der Verteilung und der bis heute nicht ganz verstandenen Dynamik soll auch der Beitrag von Wasserdampf zur katalytischen Ozonchemie angesprochen werden. Abschließend sollen noch die störenden Einflüsse des troposphärischen Wasserdampfes auf Mikrowellenmessungen am Beispiel mehrerer Standorte für ein geplantes Radiometer untersucht werden. Teile dieses Kapitels entstammen, soweit nicht anders angegeben, den Werken von Roedel (1994), Salby (1996) und Wayne (2000).

### 3.1 Globale Verteilung und Dynamik

Wasser ist eine der Grundvoraussetzungen für das Leben auf der Erde. Es kommt als einzige chemische Verbindung unter den natürlich gegebenen Umweltbedingungen in allen drei Aggregatzuständen vor. Der überwiegende Anteil des irdischen Wassers ist flüssig: Die Meere, Flüsse und das Grundwasser beinhalten ein Volumen von etwa  $1.400 \cdot 10^{15} \text{ m}^3$ , was einer mittleren Oberflächenbedeckung der Erde von etwa 2.800 m entspricht; im Eis sind noch einmal  $29 \cdot 10^{15} \text{ m}^3$  gebunden. In der Atmosphäre selbst befindet sich nur ein geringer Bruchteil von  $13 \cdot 10^{12} \text{ m}^3$  in Form von Wasserdampf – die mittlere Säulenhöhe (auch »Flüssigwasser-Äquivalent« oder in englisch »Precipitable Water Vapor« genannt) ergibt dabei etwa 25 mm. Die durchschnittliche Niederschlagsrate beträgt im Jahr zwischen 1.000 und 1.100 mm. Aus der Säulenhöhe ergibt sich daher, daß das Wasser etwa 40 mal im Jahr verdunstet und niedergeschlagen wird, was einer mittleren Verweildauer von etwa 10 Tagen entspricht. Das atmosphärische Wasser besitzt also eine sehr hohe Dynamik, die direkt mit dem Wetter korreliert ist. Die Ursache dafür ist, daß bei der Phasenumwandlungen

von Wasser große Mengen von latenter Wärme freigesetzt oder gebunden werden. Beim Verdampfen von Wasser wird eine Energie von etwa 2.500 J/g frei. Verdampfung, Transport und Kondensation bewirken damit einen Großteil des Wärmetransportes in der Hydrosphäre – dem Bereich der Troposphäre in der Wasser kondensiert und sich Wolken bilden können – und beeinflussen damit das Wettergeschehen eminent.

Der Anteil von Wasserdampf in der Luft – der »Partialdruck«  $e$  –, ergibt sich gemäß der Gasgleichung für den Wasserdampf zu:

$$e = \rho_V \cdot R_V \cdot T \quad (3.1)$$

mit  $\rho_V$  der Dichte des Wasserdampfes (auch »absolute Feuchte« genannt),  $R_V$  der Gaskonstante für den Wasserdampf ( $R_V = R/M_V$  mit  $M_V \approx 18 \cdot 10^{-3} \text{ kg/mol}$ ) und  $T$  der Temperatur. Bis zu einem von der Temperatur abhängigen maximalen Sättigungsdampfdruck kann der Wasserdampfgehalt der Luft zunehmen; sinkt die Temperatur und damit der Sättigungsdampfdruck später unter den Wasserdampf Partialdruck, kondensiert das überschüssige Wasser. Infolge der Temperaturabhängigkeit nimmt das Wasserdampf VMR durch das troposphärische Temperaturprofil mit der Höhe ab (siehe dazu Abbildung 1.1). In Bodennähe kann der Wasserdampf bis zu 3% der Luft ausmachen, bis zur Tropopause nimmt er bis auf einen Wert von 4 bis 6 ppmv exponentiell ab. Als Konsequenz ergibt sich, daß der größte Teil des atmosphärischen Wasserdampfes in der Troposphäre zu finden ist. Die bodennahen VMR sind abhängig von der geographischen Breite sowie saisonalen und witterungsbedingten Schwankungen, die mehrere Größenordnungen betragen können.

Die Tropopause dient als eine Art Kühlfalle, die den Wasserdampf durch Kondensation effizient daran hindert weiter in die Stratosphäre zu gelangen, und deren untere Bereiche dadurch sehr trocken sind. Daß es dennoch Einträge von Wasserdampf in die Stratosphäre gibt, liegt in erster Linie an der Oxidation von Methan. Dabei spielen zwei Reaktionen eine bedeutende Rolle. Die erste Reaktion, bei der Methan durch ein Hydroxyl-Radikale oxidiert wird lautet wie folgt:



Die zweite Reaktion ist weitaus komplizierter. Hierbei reagiert Methan zuerst mit einem freien, angeregten Sauerstoffatom  $\text{O}^{\text{1D}}$  um danach in einer Reaktionskette mit Formaldehyd als Zwischenergebnis zum Wasserdampf zu füh-

ren:



Methan nimmt mit der Höhe kontinuierlich ab, ohne durch die kalten Temperaturen der Tropopause beeinflusst zu werden. Die beiden Reaktionen können daher bis in Höhenbereiche von 30 bis 45 km stattfinden und führen dort zu einer Zunahme von Wasserdampf; darüber bewirkt die UV-Strahlung jedoch eine Photolyse von Methan und damit eine stetige Abnahme der Reaktionen. Methan besitzt auf der Erdoberfläche zahlreiche natürliche und menschgemachte Quellen die kontinuierlich für Nachschub sorgen. Die wichtigsten natürlichen Quellen sind Waldbrände und Sumpfbereiche, zu den anthropogenen Quellen zählen in erster Linie die Erdöl- und Erdgasgewinnung, der Anbau von Reis und die Massentierhaltung. Die Anstiegsrate über die letzten 50 Jahre betrug 0,5 bis 1% und hat in den vergangenen Jahren leicht abgenommen; die mittlere atmosphärische Lebensdauer von Methan liegt bei etwa 10 Jahren.

Abbildung 3.1 zeigt Messungen des Instrumentes HALOE (für »Halogen Occultation Experiment«) das auf dem Satelliten UARS (für »Upper Atmosphere Research Satellite«) bis Ende September 2001 flog. Es handelt sich hierbei um Methan- und Wasserdampfmessungen sowie die Summe aus beidem ( $2 \times \text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O}$ ) über der geographischen Breite. Obgleich die einzelnen Spezies sehr unterschiedliche Vertikalprofile aufweisen zeigt sich, daß in der Summe das VMR des gesamten Wasserstoffes weitestgehend konstant bleibt.

Die troposphärischen Wasserdampftransporte folgen den jahreszeitlichen Windströmungen und sind der komplizierten Dynamik des Wetters unterworfen. In der Stratosphäre ist die Sachlage einfacher, denn ein Großteil des Transportes wird wie beim Ozon durch die in Abschnitt 1.2 vorgestellte globale meridionale Zirkulation hervorgerufen. Wie weiter oben schon beschrieben wirkt die Tropopause wie eine Kühlfalle; die niedrigsten Tropopausentemperaturen in Verbindung mit den größten Tropopausenhöhen existieren in den Tropen. Nach Holton und Gettelman (2001) wird die Luft primär durch horizontale Transporte über diese Grenzschicht hinweg stark dehydriert – ein Effekt, der

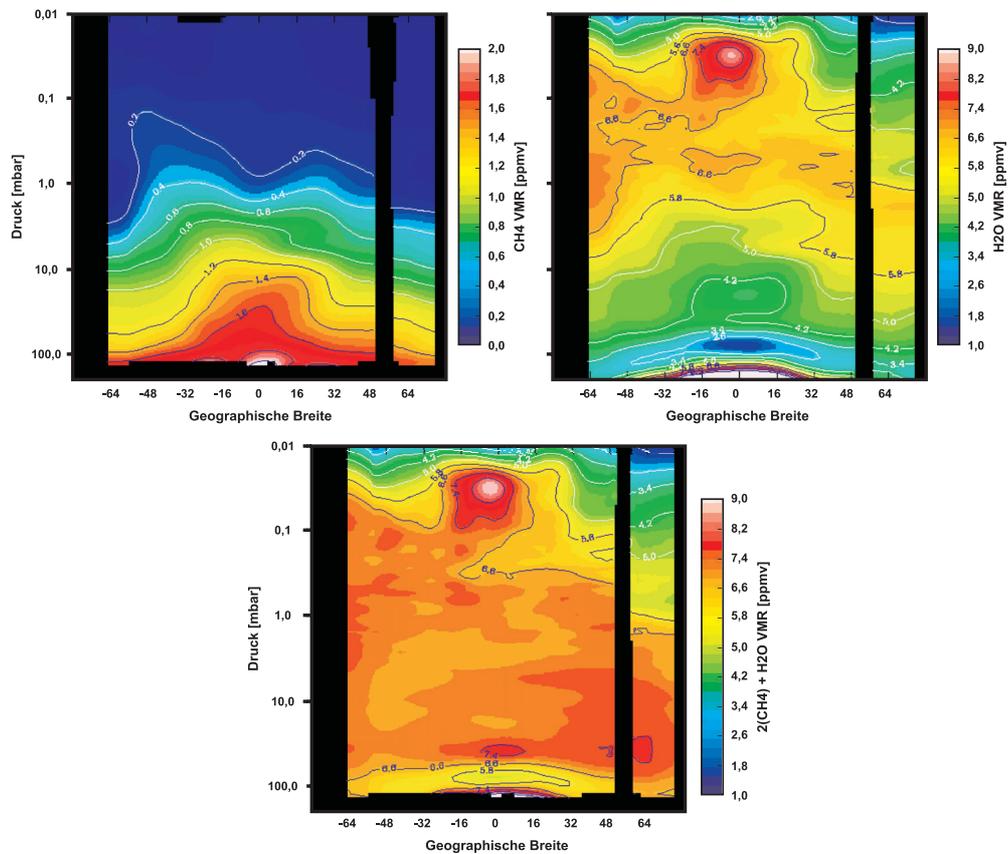


Abbildung 3.1: Beispiele für Wasserdampf und Methan aus Datensätzen des HALOE Instruments. Links-oben Methan, rechts-oben Wasserdampf und unten die Summe aus  $2 \times \text{CH}_4$  und  $\text{H}_2\text{O}$ . Trotz unterschiedlicher Profile der beiden Spezies ist das VMR der Summe weitestgehend konstant (Datensätze vom 20. März bis 3. Mai 2001 von der Homepage des UARS).

in Abbildung 3.1 (oben-rechts) deutlich zu erkennen ist. Die globale meridionale Zirkulation transportiert diese trockene Luft dann weiter zu den Polen.

In Abbildung 3.2 erkennt man die zeitliche Entwicklung, welche zur Ausbildung des »tropischen Tape-Recorders« führt. Die dehydrierte Luft erfährt dabei eine Advektion in die oberen Bereiche der Stratosphäre, die nicht über Isentropen mit der Troposphäre verbunden sind. Aufgrund der zeitlichen Änderung der Tropopausentemperatur strömt mehr oder weniger feuchte Luft nach, so daß sich eine Bandstruktur wie bei einem VHS- oder DAT-Aufnahmegerät ausbildet. Der jährliche Zyklus sowie die Aufstiegsgeschwindigkeit wird durch die in Abschnitt 1.2 beschriebene Quasi Biennale Oszillation beeinflusst.

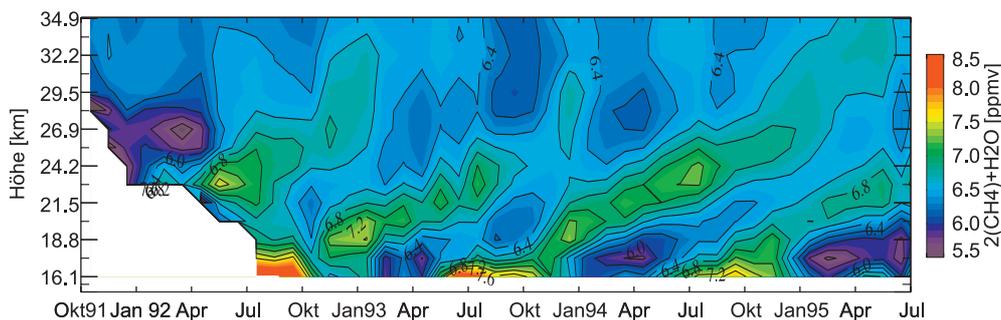


Abbildung 3.2: Die Summe von  $2 \times \text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O}$  aus zonal gemittelten Äquatorialmessungen des HALOE Instrumentes nach Mote et al. (1996). Deutlich erkennbar ist der Aufstieg von dehydrierter Luft – der sogenannte tropische Tape Recorder Effekt.

Über den Zeitraum der letzten 50 Jahre wurde über alle Breiten hinweg in der mittleren Stratosphäre ein starker Anstieg des Wasserdampfes beobachtet. Dabei wurden verschiedene Meßinstrumente miteinander verglichen und die Datensätze zueinander ergänzt. Rosenlof et al. (2001) sieht einen Anstieg von etwa 1% beziehungsweise 0,05 ppmv pro Jahr beziehungsweise etwa 2 ppmv insgesamt. Nach Smith et al. (2001) zeigt dabei alleine das HALOE Instrument, wie in Abbildung 3.3 erkennbar eine verifizierte Zunahme von 0,17 ppmv pro Jahr zwischen 1991 und 1999. Diese Zunahme geht einher mit einer beobachteten Abnahme von Methan in den entsprechenden Höhenbereichen; jedoch hat sich gezeigt, daß diese bei weitem nicht ausreicht um die beobachteten Effekte zu erklären. Die mittlere Zunahme von Methan aufgrund von Eingriffen des Menschen (Brandrodung, Industrie oder der Straßenverkehr) wurde für den gesamten Zeitraum mit etwa 0,55 ppmv bestimmt womit sich eine zusätzlich Wasserdampfungnahme von etwa 1,1 ppmv erklären ließe. Doch auch damit läßt sich der Wasserdampftrend nicht vollends verstehen, so daß eine weitere Ursache gefunden werden muß. Die gängige Hypothese zur Lösung des Problems ist, daß durch eine Erwärmung der tropischen Tropopause deutlich mehr Wasserdampf direkt in die Stratosphäre gelangen kann, was letztendlich eine Bestätigung für die globale Klimaveränderung wäre. Diese Annahme wird von zahlreichen unabhängigen Untersuchungen in denen ein erhöhter Wasserdampftransport in meridionaler Richtung in die Extratropen beobachtet wurde (zum Beispiel Liewn et al. (2000)) unterstützt.

In den vergangenen zwei Jahrzehnten wurde eine Abkühlung der unteren Stratosphäre in Höhenbereichen der Ozonschicht beobachtet, die in mittleren Breiten etwa 1 K und in hohen Breiten bis zu 5 K betragen kann – Daten ge-

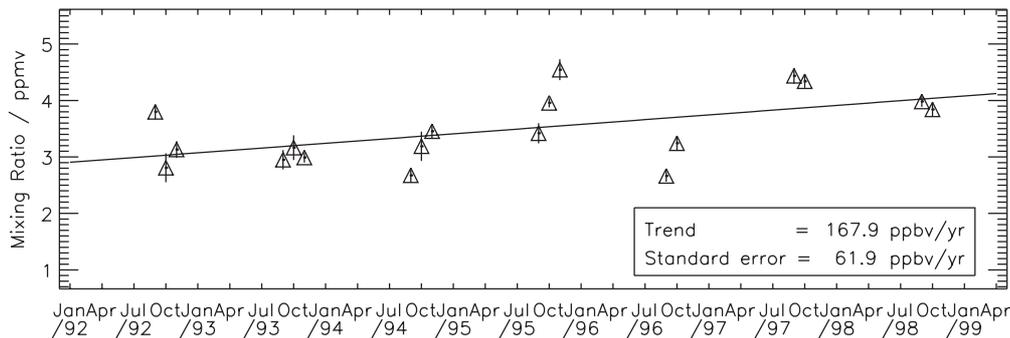


Abbildung 3.3: Die Wasserdampfentwicklung aus Smith et al. (1999). Es handelt sich um Daten des HALOE Instrumentes als zonales Mittel für den Äquatorbereich ( $4,72^\circ$  Nord bis  $4,72^\circ$  Süd) auf 105,4hPa (entspricht einer Höhe von etwa 18km).

mäß WMO (1999). Dabei sind die beobachteten Abkühlungen weitaus größer, als daß sie nur durch die gemessenen Ozonverluste oder die Zunahme von Kohlendioxid allein erklärt werden könnten. Untersuchungen von Foster et al. (1999) sowie Smith et al. (2001) machen hier die Zunahme von Wasserdampf verantwortlich. Aus ihren Untersuchungen ergibt sich, daß die atmosphärische Strahlungskühlung durch Wasserdampf in etwa die gleich Größenordnung hat, wie die geringere Heizung durch Ozonverluste, beziehungsweise die erhöhte Strahlungskühlung durch die Kohlendioxidzunahme.

Alles in allem zeigt sich also, daß die Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfes sowohl ein Marker für die klimatischen Veränderungen der Erde sind als auch selbst durch die erhöhte Kühlung in der ohnehin empfindlichen Ozonschicht Einfluß auf das Klima nehmen können – dabei ist die Dynamik des Wasserdampfes bis heute nicht ganz verstanden, so daß alle dargestellten Punkte noch Stoff aktueller Forschung sind.

Da in der arktischen Zone keine regelmäßigen Messungen von stratosphärischen Wasserdampf durchgeführt werden und die entsprechenden Satelliten nur im Sommer Breiten über  $70^\circ$  erreichen, haben wir uns entschlossen in Ny-Ålesund ein Radiometer für die langjährige Bestimmung von Wasserdampfprofilen zu installieren. Ausführliche Informationen zum 1999 in Betrieb genommenen Meßgerät finden sich in Kapitel 6.

### 3.2 Wasserdampf und katalytische Ozonchemie

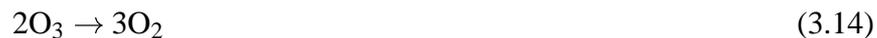
Wasserdampf und Methan leisten einen Beitrag zur katalytischen Ozonchemie indem sie Wasserstoff in die Stratosphäre transportieren und dort in Form von OH freisetzen:



Dieses aktivierte Hydroxyl-Radikal kann in einer Vielzahl von katalytischen Abbaukreisläufen – den sogenannten  $\text{HO}_x$  Zyklen – am Ozonabbau teilnehmen. In der oberen Stratosphäre, in der es zahlreiche aktivierte Sauerstoff Radikale gibt, wirkt zum Beispiel folgender Kreislauf sehr effizient:



In der unteren Stratosphäre gibt es hingegen kaum freie Sauerstoffmoleküle, so daß folgender Zyklus der effizientere ist:



Neben diesen beiden gibt es noch zahlreiche weitere Abbauzyklen, die man zum Beispiel bei Solomon (1999) nachschlagen kann. Sie alle werden nur unterbrochen, wenn das  $\text{HO}_x$  durch Übergang in ein Reservoir aus dem Kreislauf entfernt wird. Der Übergang in das Reservoir kann dabei auf mehreren Wegen erfolgen:



Dabei kann das  $\text{H}_2\text{O}$  durch die Reaktion (3.8) immer wieder zersetzt werden,

während die Reservoirgase (wie in Abschnitt 2.2 beschrieben) photodissoziieren können.

In der unteren Stratosphäre, in den Höhenbereichen der Ozonschicht, ist der im letzten Kapitel beschriebene  $\text{ClO}_x$  Zyklus entscheidend für den Ozonabbau. Erst in einer Höhe von 35 bis 40 Kilometern erreicht der  $\text{HO}_x$  Zyklus die gleiche Effizienz um darüber hinter dem hier nicht näher beschriebenen  $\text{NO}_x$  Abbauzyklus zurückzufallen. Untersuchungen von Auswirkungen der beobachteten Erhöhung des stratosphärischen Wasserdampfes (zum Beispiel bei Shindell (2001)) haben gezeigt, daß es durchaus einen meßbaren Einfluß auf den Ozonhaushalt der Stratosphäre geben könnte.

### **3.3 Eine Studie zum Einfluß von Wasserdampf auf Mikrowellenmessungen**

Wasserdampf weist sehr starke Spektrallinien auf, die sich zu höheren Frequenzen in Form eines »Wasserdampf Kontinuums« auswirken (siehe dazu auch die Abbildung 5.1). Dieses troposphärische Wasserdampfkontinuum besitzt abhängig von der Jahreszeit und dem aktuellen Wettergeschehen eine große Variabilität. Neben einer meßbaren Signalverzögerung, die zum Beispiel für tomographische Meßverfahren des atmosphärischen Wasserdampfgehaltes mit dem GPS Satellitennetz ausgenutzt werden können, bewirkt das Kontinuum auch einen zusätzlichen Signaluntergrund sowie eine Signaldämpfung anderer Spurengaslinien. Abhängig vom Beobachtungsort und insbesondere von der Höhe in der Troposphäre werden damit Mikrowellenmessungen mehr oder weniger stark gestört. Aufgrund des exponentiellen VMR Abfalles mit der Höhe befindet sich der Großteil des Wasserdampfes in der unteren Troposphäre und so verwundert es nicht, daß die Opazität am Boden (für die Spektrallinie bei 278 GHz) um den Faktor 1.000 größer ist als in einer Höhe von 10 km.

Im Folgenden wird von Opazität und Transmission die Rede sein; erstere ist ein logarithmisches Maß mit der Einheit »Neper«, letztere gibt in Werten von 0 bis 1 an, welcher Anteil einer Strahlung ein begrenzendes Element passieren kann. Die Umrechnung der Opazität  $\tau$  in die Transmission  $Tr$  geschieht dabei

nach folgender Formel:

$$Tr = \exp(-\tau) \quad (3.18)$$

Für die Planungen eines weiteren Radiometers zur Beobachtung der 278 GHz Chlormonoxid Spurengaslinien wurden im Rahmen dieser Arbeit mehrere Standorte auf ihre prinzipielle Tauglichkeit untersucht. Als wichtigste Faktoren wurde dazu die jahreszeitliche Dynamik des lokalen troposphärischen Wasserdampfes bestimmt sowie der sich daraus ergebende Einfluß auf die entsprechende Spurengaslinie modelliert.

Tabelle 3.1: Die für diese Untersuchung herangezogenen Orte, ihre geographischen Koordinaten sowie die Beobachtungshöhe auf denen das Radiometer installiert werden könnte.

Ort	Koordinaten	Beobachtungshöhe
Ny-Ålesund, Spitzbergen	79°N 11°O	Meereshöhe
Summit, Grönland	72°N 38°W	3200m
Mérida, Venezuela	8°N 71°W	1800, 3600 und 4765 m
Réunion, Indischer Ozean	20°S 55°O	2200 und 3000m

Die zum Vergleich herangezogenen Standorte waren Ny-Ålesund auf dem Spitzbergen Archipel als Referenz, sowie das Summit Hochplateau auf Grönland, der Ort Mérida in Venezuela und die Insel Réunion im Indischen Ozean – die zugehörigen Daten sind in Tabelle 3.1 zusammengefaßt. Bei unterschiedlichen Höhenangaben gibt es mehrere Möglichkeiten der Unterbringung des Radiometers.

Die für diese Untersuchung verwendeten Daten stammen aus Reanalysen des »National Center for Environmental Predictions« (kurz NCEP). Für jeden Standort wurde ein Satz von Monatsmitteln aus 40 Jahren (von 1958 bis 1997) berechnet, der jeweils die Wasserdampf-Volumenmischungsverhältnisse sowie die Druck- und Temperaturprofile als Klimatologie beinhaltet.

Das Modell MPM93 (Abkürzung für »Millimeter Wave Propagation Model« in der Version vom Juni 1993) von Liebe et al. (1993) wurde für die Bestimmung der sich aus dem Wasserdampf ergebenden troposphärischen Opazität herangezogen. Es beinhaltet ein Kontinuums-Modul sowie ein Linien-Modul für die 34 stärksten Wasserdampf-Linien; eine ausführliche Beschreibung von MPM93 sowie eine Diskussion möglicher Probleme der Wasserdampfmodellierung findet sich bei Bühler (1999).

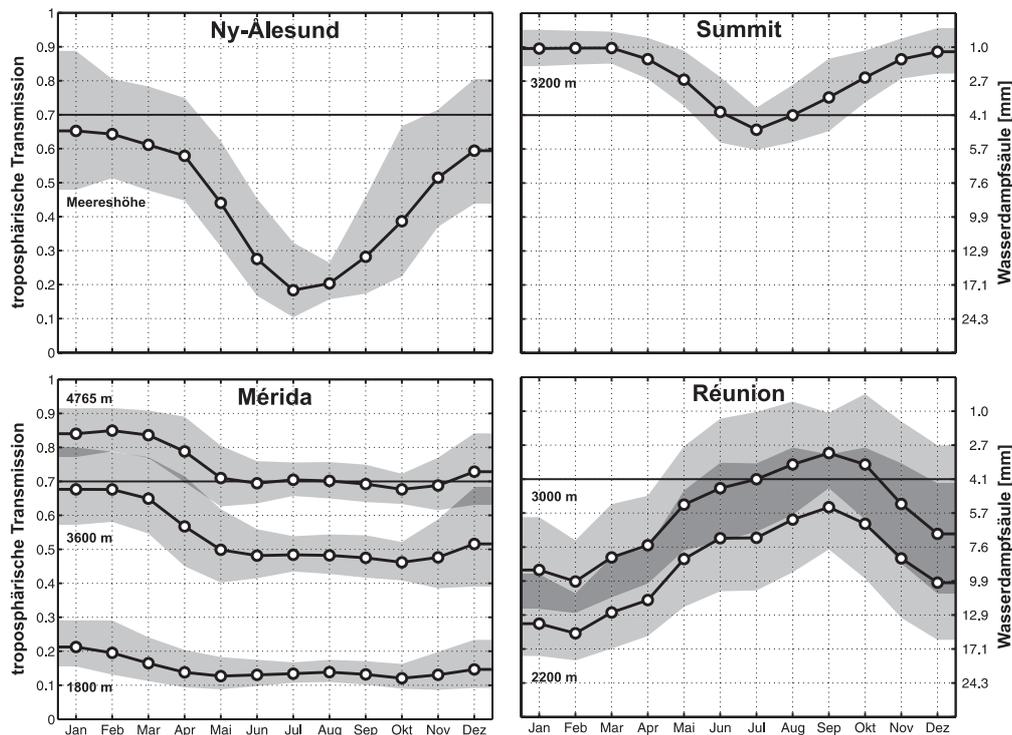


Abbildung 3.4: Modellrechnungen für die Transmissionen der vier Standorte mit ihren verschiedenen Beobachtungshöhen, berechnet jeweils für Zenit Beobachtungsgeometrie bei 278GHz. Der grau unterlegte Bereich beruht auf den Schwankungen in dem 40 Jahre umfassenden Datensatz; die dicke Linie bei 70% Transmission ist eine grob abgeschätzte Detektionsgrenze für die 278GHz Chlormonoxidlinie.

In Abbildung 3.4 sind die wichtigsten Ergebnisse der verschiedenen Modellrechnungen zusammengefaßt. Berechnet wurden sie für 278GHz und Zenit Beobachtungsgeometrie, bei der die troposphärische Opazität den geringsten Einfluß nimmt. Wie man eindeutig erkennt ist Summit die Station mit den mit Abstand besten Ergebnissen – das sollte nicht verwundern, denn es ist einer der trockensten Orte der nördlichen Hemisphäre an dem ähnliche Verhältnisse wie in der Antarktis herrschen. Letztendlich haben wir uns aufgrund dieser Bedingungen entschieden eines der neuen Meßgeräte in Summit aufzustellen. Geplant ist die Inbetriebnahme für die Winter-Saison 2003/2004 – mehr zum RAMAS Gerät im Ausblick in Kapitel 10. Auch die Mérida Station auf dem Pico Espejo in 4765 m Höhe bietet über das ganze Jahr hinweg gute Bedingungen für die Beobachtung der 278GHz Chlormonoxid Linie. Mittlerweile hat sich ergeben, daß wir in Zusammenarbeit mit dem Forschungszentrum Karls-

ruhe auch dort ein Meßgerät installieren werden, das Anfang 2002 zur Validation des SCIAMACHY Instrumentes (Abkürzung für »Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography«) auf dem ENVISAT Satelliten in Betrieb genommen wird – auch zum MARS Radiometer mehr in Kapitel 10. Interessant ist, daß unser bisheriger Beobachtungsstandort Ny-Ålesund die schlechtesten Ergebnisse liefert. Dieses liegt vor allem an seiner Position auf Meereshöhe, bei dem der gesamte troposphärische Wasserdampf störend wirken kann. Lediglich bei guten atmosphärischen Bedingungen, die an wenigen Tagen im polaren Winter gegeben sind, ist die Transmission ausreichend für Mikrowellenmessungen der Chlormonoxid Linie bei 278 GHz. Die Insel Réunion wird vom feuchten Seeklima beeinflusst, die Bedingungen auf den Bergstationen entsprechen dabei in etwa denen von Ny-Ålesund.

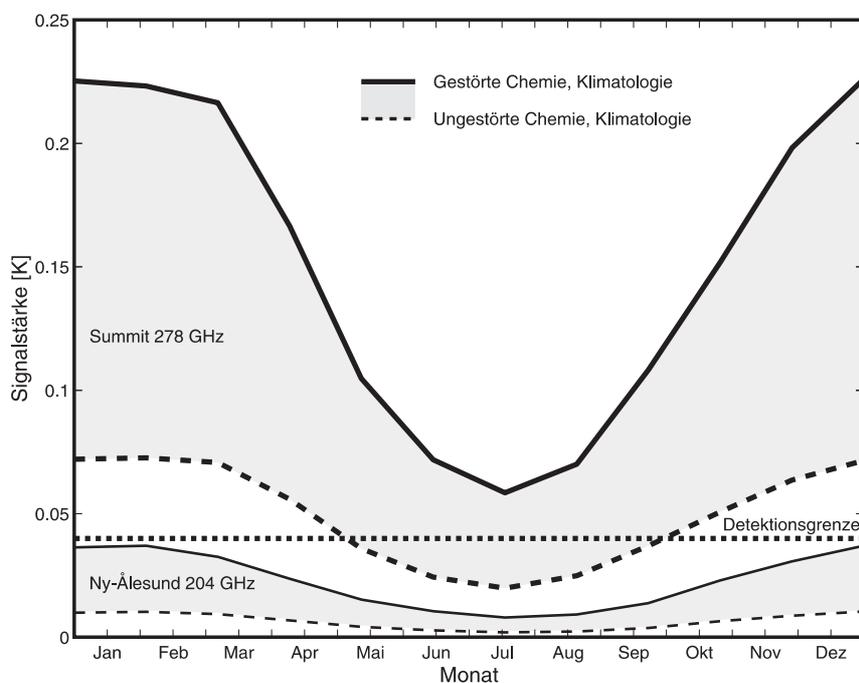


Abbildung 3.5: Ein modellierter Vergleich der Signalstärken des vorhandenen 204 GHz Radiometers in Ny-Ålesund und des geplanten 278 GHz Radiometers in Summit. Die Rechnungen wurden für einen monatlich neu bestimmten optimalen Beobachtungswinkel durchgeführt; die »Detektionsgrenze« ist nur ein geschätzter Wert. Es zeigt sich, daß in der Summit Station außer in den Sommermonaten Chlormonoxidmessungen problemlos möglich sein sollten. In Ny-Ålesund bedarf es hingegen auch in den Wintermonaten überdurchschnittlich guter Meßbedingungen.

Die Ergebnisse des Kontinuums-Modells wurde schließlich für Vorwärtsrechnungen der Chlormonoxid-Spurengaslinien verwendet – jeweils für die geplante Summit Station mit 278GHz und zum Vergleich für Ny-Ålesund mit 204GHz. Unabhängig von dem betrachteten Monat wurden dabei jeweils Rechnungen ohne und mit Chloraktivierung in 20km Höhe durchgeführt – letzteres führt zu einer ausgeprägteren und damit einfacher zu detektierenden Spurengaslinie. Für die Vorwärtsrechnung wurde das Programm `forward`<sup>1</sup> von Stefan Bühler verwendet; Eingangsparameter war neben den Modelldaten auch die verwendete Klimatologie. Für jeden Monat wurde zudem ein optimaler Beobachtungswinkel bestimmt, unter dem die Signalstärke abhängig von Opazität und dem Weg durch die Atmosphäre maximal wird.

Die Ergebnisse der Vorwärtsrechnungen sind in Abbildung 3.5 dargestellt. Wie schon in Abbildung 3.4, so ist auch hier die Detektionsgrenze ein angenommener Erfahrungswert. Es zeigt sich, daß in Ny-Ålesund nur bei gutem Meßwetter die Detektionsgrenze überschritten werden kann; bei mittleren Wetterbedingungen, wie in der Abbildung dargestellt, bleibt die empfangene Signalstärke aufgrund der Abschwächung durch die Troposphäre jedoch unterhalb der Grenze. Anders bei der Summit Station. Bei aktiviertem Chlormonoxid bleibt das Signal dauerhaft über der Detektionsgrenze; bei inaktivem Chlor sinkt die Signalstärke in den Sommermonaten zwischen April und Oktober aber auch hier unter die Grenze. Letzteres bedeutet, daß in den Sommermonaten auch hier gutes Meßwetter notwendig sein wird, da zu dieser Zeit kein aktiviertes Chlor zu erwarten ist.

---

<sup>1</sup> Nicht zu verwechseln mit dem gleichnamigen Vorwärtsprogramm von Ingo Wohltmann, welches für das Spurengasretrieval verwendet wird.

**Teil II**

# **Passive Mikrowellenradiometrie**



## 4 Grundlagen der Radiometrie

Dieses Kapitel behandelt die für das Verständnis der Arbeitsweise eines Mikrowellenradiometers notwendigen Grundlagen. Beschrieben werden die charakteristischen Eigenschaften der Meßsysteme, die verwendeten Meßverfahren wie die Total-Power oder die Referenzstrahl Methode, die verwendeten Beobachtungsgeometrien sowie die auftretenden Probleme mit ihren Lösungsansätzen. Für Detailfragen sei an dieser Stelle auf die vorhergehenden Arbeiten der verschiedenen Mikrowellengruppen des Institutes für Umweltphysik, sowie die umfangreiche Literatur wie insbesondere Vowinkel (1988), Goldsmith (1997) oder Ulaby et al. (1981) verwiesen.

### 4.1 Heterodynverfahren

Ziel der radiometrischen Messungen sind Emissionslinien von sehr geringer Intensität, die sich für Wasserdampf bei 22,23508 GHz und Chlormonoxid bei 204,3519 GHz befinden. Das in unserem Radiometer verwendete Spektrometer besitzt jedoch eine Eingangsmittelfrequenz von 2,1 GHz und so ist es notwendig das Signal unter Beibehaltung aller spektralen Informationen auf diesen Wert umzusetzen. Die dazu verwendete Technik ist das Heterodyn-Verfahren, das in dieser Form auch bei Radioempfängern oder Radaranlagen Verwendung findet. In einer Diode wird hierbei das atmosphärische Signal mit einem festfrequenten Lokaloszillator Signal überlagert – man sagt auch »gemischt«. Durch die nichtlineare Strom-Spannungscharakteristik der Diode wird das atmosphärische Signal  $\nu_{\text{atm}}$  mit der Lokaloszillatorfrequenz  $\nu_{\text{LO}}$  gemäß

$$\nu_{\text{ZF}} = |\nu_{\text{atm}} \pm \nu_{\text{LO}}| \quad (4.1)$$

auf die Zwischenfrequenz  $\nu_{\text{ZF}}$  umgesetzt. Das Zwischenfrequenz Signal besteht damit aus zwei überlagerten Frequenzbändern – dem oberen und dem

unteren Seitenband –, die symmetrisch oberhalb und unterhalb der Lokaloszillatorfrequenz liegen. Das Seitenband mit dem Signal der beobachteten Emissionslinie wird üblicherweise als Signalseitenband, das andere als Spiegelseitenband bezeichnet.

Ohne eine weitere Unterdrückung eines der Seitenbänder handelt es sich beim Radiometer um einen Doppelseitenband-Empfänger. Ein solcher Empfänger ist aber nur dann sinnvoll, wenn sich im Spiegelseitenband kaum störende Einflüsse anderer Emissionslinien befinden, oder wenn der Mischer selbst hinreichend schmalbandig ist und nur das Signalseitenband empfängt. Wird das Spiegelseitenband vor dem Mischprozess unterdrückt, dann handelt es sich beim Radiometer um einen Einseitenband-Empfänger<sup>1</sup>.

## 4.2 Systemempfindlichkeit

Die Ausgangsleistung des Radiometers  $P_{\text{Ausgang}}^{\text{Quelle}}$  bei einer bestimmten Frequenz setzt sich gemäß Gleichung (4.2) aus zwei Komponenten zusammen: Der an der Antenne empfangenen atmosphärischen Strahlungsleistung  $P_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}}$  und der thermischen Rauschleistung  $P_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}}$  des Empfangssystems selbst.

$$P_{\text{Ausgang}}^{\text{Quelle}} = P_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}} + P_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}}. \quad (4.2)$$

Die Rauschleistung des Empfängers setzt sich aus einem Beitrag für den Mischer  $P_{\text{Mischer}}$  und für die Verstärkerkette  $P_{\text{Verstärker}}$  zusammen:

$$P_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}} = P_{\text{Mischer}}^{\text{Empfänger}} + L \cdot P_{\text{Verstärker}}^{\text{Empfänger}} \quad (4.3)$$

Die einzelnen Rauschbeiträge der Komponenten in der Verstärkerkette werden jeweils durch die Konversionsverluste  $L$  am Mischer und den jeweils vorhergehenden Komponenten abgeschwächt. Somit tragen die ersten Komponenten am meisten zum Gesamtrauschen des Empfängers bei – einem Umstand dem man dadurch Rechnung trägt, daß diese Komponenten sehr rauscharm konzipiert werden müssen.

Gemäß der im folgenden Kapitel eingeführten Gleichung (5.6) lassen sich

---

<sup>1</sup> Man spricht in diesem Fall auch von einem SSB Empfänger (Abkürzung für »Single Side Band«).

die Leistungen auch als Strahlungstemperaturen darstellen. Damit schreibt sich Gleichung (4.2) als:

$$T_{\text{Ausgang}}^{\text{Quelle}} = T_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}} + T_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}} \quad (4.4)$$

$T_{\text{SYS}}$  wird Systemrauschtemperatur genannt und ist ein Maß für die Güte des Meßsystems. Da die Anteile von Empfängereigenrauschen und Antennensignal nicht zu unterscheiden sind, bedeutet eine geringe Systemrauschtemperatur grundsätzlich einen geringeren Einfluß des Empfängerrauschens und damit die Möglichkeit zur genaueren Bestimmung des atmosphärischen Anteils.

Gemäß der »Y-Faktor Methode« läßt sich  $T_{\text{SYS}}$  bestimmen, in dem die Leistungen  $P_{\text{Warm}}$  und  $P_{\text{Kalt}}$  zweier Eichlasten mit verschiedenen aber bekannten Strahlungstemperaturen  $T_{\text{Warm}}$  und  $T_{\text{Kalt}}$  vermessen werden – siehe dazu auch die Abbildung 4.1. Die Systemrauschtemperatur ergibt sich dann zu folgender Geradengleichung:

$$T_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}} = \frac{T_{\text{Warm}} - Y \cdot T_{\text{Kalt}}}{Y - 1} \quad \text{mit} \quad Y = \frac{P_{\text{Warm}}}{P_{\text{Kalt}}} \quad (4.5)$$

Die Radiometergleichung (4.6) gibt schließlich Aufschluß über die minimale Temperaturauflösung  $\Delta T_{\text{min}}$ , abhängig vom Empfängerrauschen, der Integrationszeit  $t$  und der Frequenzbandbreite  $\Delta\nu$ :

$$\Delta T_{\text{min}} = \frac{\alpha \cdot T_{\text{Empfänger}}}{\sqrt{\Delta\nu \cdot t}} \quad (4.6)$$

Die Konstante  $\alpha$  ist vom verwendeten Meßverfahren abhängig; sie ist 1 für das »Totalpower« und 2 für das »Referenzstrahl« Verfahren.

Aus der Radiometergleichung ergibt sich die Erkenntnis, daß eine Verbesserung der »Temperaturauflösung« des Meßgerätes nur auf zwei Wegen erfolgen kann. Entweder durch eine Verringerung des Empfängerrauschens (beziehungsweise der Systemrauschtemperatur) oder aber durch eine Verlängerung der Integrationszeit. Ersteres wird durch die technischen Möglichkeiten, letzteres durch die Schwankungen im Spektrum selbst begrenzt, so daß letztendlich ein Kompromiß aus Empfängergüte und Integrationszeit gefunden werden muß. Einen Hinweis auf die bestmögliche Integrationszeit gibt die »Allan-Varianz«, die in Abschnitt 6.7 in Hinblick auf das Wasserdampf Radiometer noch ausführlich beschrieben wird.

### 4.3 Baseline Effekte

Das Intensitätsspektrum, das man ohne jeglichen Einfluß eines atmosphärischen Signales mit dem Spektrometer mißt nennt man die »Baseline« des Gerätes. Im Idealfall sollte jeder Spektrometerkanal den gleichen Wert zeigen, doch das reelle Meßgerät wird durch zahlreiche Effekte beeinträchtigt, die der Baseline eine Struktur aufprägen.

In erster Linie handelt es sich dabei um Einflüsse, die auf die Frequenzcharakteristiken der verschiedenen Bauteile wie Verstärker, Filter oder Mischer zurückgehen. Sie sind zumeist abhängig von deren Betriebstemperatur oder den Schwankungen der Versorgungsspannungen und müssen im Rahmen der Meßzeiten als hinreichend konstant angesehen werden. Lediglich durch Auswahl geeigneter Bauteile beim Design des Radiometers läßt sich Einfluß auf diese Effekte nehmen.

Als weiterer wichtiger Einfluß auf die Baseline sind die »Stehwellen« zu nennen. Hierbei handelt es sich um Mehrfachreflexionen innerhalb des Radiometersystems – ganz analog einem Fabry-Pérot Interferometer. Ihre Ursachen sind sehr vielfältig; unter anderem können es Diskontinuitäten des Wellenwiderstandes, fehlerhafte Impedanzanpassungen von Hochfrequenz-Bauteilen, schlecht kombinierte polarisationempfindliche Komponenten oder ungünstige Aperturbegrenzungen bei zu großen Strahlweiten sein. Je nach Wellenlänge interferieren die Teilstrahlen konstruktiv oder destruktiv, so daß sich eine Stehwelle als Sinusförmige Störung im Intensitätsspektrum ausbildet. Die Resonatorlänge  $L$  einer Stehwelle ergibt sich aus ihrer Periode  $P$  gemäß der Fabry-Pérot Formel:

$$L = \frac{c}{2 \cdot P} \quad (4.7)$$

In der Quasioptik<sup>2</sup> des Radiometers können die Stehwellen durch Einsatz eines »Weglängenmodulators«, der während einer Meßwertaufnahme die Resonatorlänge periodisch variiert, herausgemittelt werden. Bei Wellenleitern und elektronischer Signalführung kann durch Verwendung von Isolatoren, die das Signal nur in einer Richtung unvermindert passieren lassen, in der Rückrichtung jedoch sperren, der Fabry-Pérot Effekt stark vermindert werden. Die An-

---

<sup>2</sup> Mit Quasioptik wird jener Teil des Radiometers bezeichnet, in dem die elektromagnetische Strahlung mittels optischer Komponenten wie Linsen, Spiegeln und Gittern geführt wird, siehe dazu zum Beispiel Goldsmith (1997).

passung von Bauteilimpedanzen mittels Abschwächerenlementen sowie die Verwendung reflexionsarmer Verbindungen gehört zu den grundlegendsten Vorgehensweisen bei der Optimierung des Meßsystems.

In den Abschnitten 6.2 und 6.3 werden die im Rahmen dieser Dissertation zur Verminderung von Stehwellen vorgenommenen Änderungen an den Radiometern der Arbeitsgruppe beschrieben. Für weitergehende Informationen zur Entstehung von Stehwellen sowie den Möglichkeiten ihrer Unterdrückung sei an dieser Stelle auf die Arbeiten von Krupa (1997) und insbesondere Berg (2000) verwiesen.

## 4.4 Totalpower Verfahren

Mit diesem Meßverfahren läßt sich die absolute Gesamtleistung eines gemessenen atmosphärischen Signales quantitativ bestimmen. Voraussetzung ist eine lineare Empfangscharakteristik sowie die Vernachlässigung von Verstärkerschwankungen. Dieses sollte bei hinreichend kurz gewählten Meßintervallen gegeben sein.

Die Ausgangsleistung des Radiometers  $P_{\text{Ausgang}}^{\text{Quelle}}$  ist linear abhängig von der an der Antenne empfangenen Leistung der Strahlungsquelle mit der zugehörigen Strahlungstemperatur  $T_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}}$ :

$$P_{\text{Ausgang}}^{\text{Quelle}} = P_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}} + G \cdot T_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}} \quad (4.8)$$

Bei  $G$  handelt es sich um den Verstärkungsfaktor des Gesamtsystems (vom englischen »Gain«, im deutschen oftmals auch »Gewinn«) und ist eine radiometerspezifische Größe,  $P_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}}$  ist die Systemrauschleistung des Empfängers.

Zur Bestimmung der unbekanntenen Strahlungstemperatur müssen die Leistungssignale  $P_{\text{Ausgang}}^{\text{Warm}}$  und  $P_{\text{Ausgang}}^{\text{Kalt}}$  von zwei Referenzlasten mit bekannten, möglichst sehr unterschiedlichen Strahlungstemperaturen  $T_{\text{Antenne}}^{\text{Warm}}$  und  $T_{\text{Antenne}}^{\text{Kalt}}$  gemessen werden.

$$P_{\text{Ausgang}}^{\text{Warm}} = P_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}} + G \cdot T_{\text{Antenne}}^{\text{Warm}} \quad (4.9)$$

$$P_{\text{Ausgang}}^{\text{Kalt}} = P_{\text{SYS}}^{\text{Empfänger}} + G \cdot T_{\text{Antenne}}^{\text{Kalt}} \quad (4.10)$$

Die aus der Atmosphäre empfangene Strahlungstemperatur  $T_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}}$  ergibt

sich dann gemäß folgender Formel:

$$T_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}} = \frac{T_{\text{Antenne}}^{\text{Warm}} - T_{\text{Antenne}}^{\text{Kalt}}}{P_{\text{Ausgang}}^{\text{Warm}} - P_{\text{Ausgang}}^{\text{Kalt}}} \cdot (P_{\text{Ausgang}}^{\text{Quelle}} - P_{\text{Ausgang}}^{\text{Kalt}}) + T_{\text{Antenne}}^{\text{Kalt}} \quad (4.11)$$

Sofern sich die Temperaturen der betrachteten Referenzlasten im Gültigkeitsbereich der Rayleigh-Jeans-Näherung befinden, sind deren Strahlungstemperaturen identisch mit ihren physikalischen Temperaturen und können mit herkömmlichen Thermometern bestimmt werden. Im einfachsten Fall kann es sich hierbei um flüssigen Stickstoff sowie Mikrowellen-Absorbermaterial bei gemessener Raumtemperatur handeln. Abbildung 4.1 zeigt schematisch die Kalibration der Strahlungsleistung mittels der Totalpower Methode.

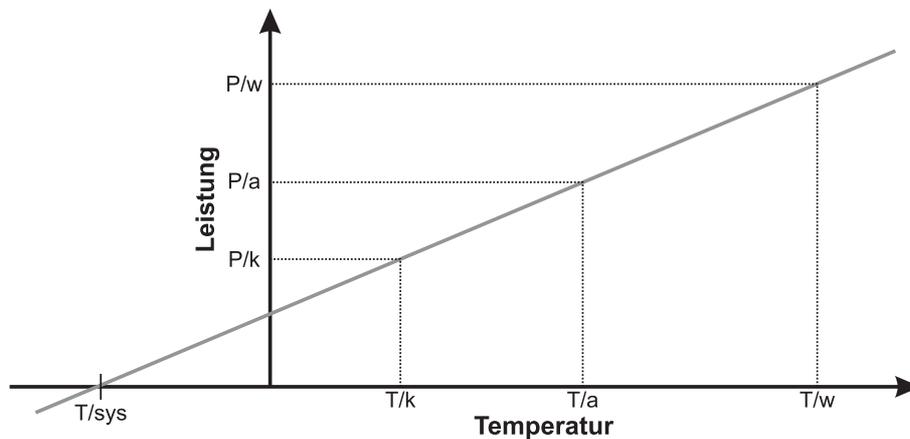


Abbildung 4.1: Schema für die Kalibration der Strahlungsleistung mittels der Totalpower Methode.  $T/k$  und  $T/w$  sind die Temperaturen der kalten und warmen Kalibrationslast mit den gemessenen Leistungen  $P/k$  und  $P/w$ . Aus der gemessenen atmosphärischen Strahlungsleistung  $P/a$  kann die Temperatur der Atmosphäre  $T/a$  bestimmt werden. Mittels Gleichung (4.5), der Y-Faktor Methode, kann aus den Messungen der warmen und der kalten Last auch die Systemrauschtemperatur  $T_{\text{sys}}$  bestimmt.

## 4.5 Referenzstrahl Verfahren

Das Totalpower Verfahren ist bestens geeignet, wenn die Verstärkungsschwankungen und Nichtlinearitäten des Systems klein sind im Vergleich zur Leistung

der beobachteten Spurengaslinie. Befindet sie sich jedoch in der gleichen Größenordnung, so daß sie im Rauschen oder der Baseline des Systems untergeht, kann das Referenzstrahl Verfahren (auch »beam switch« Verfahren genannt) nach Parrish et al. (1988) verwendet werden.

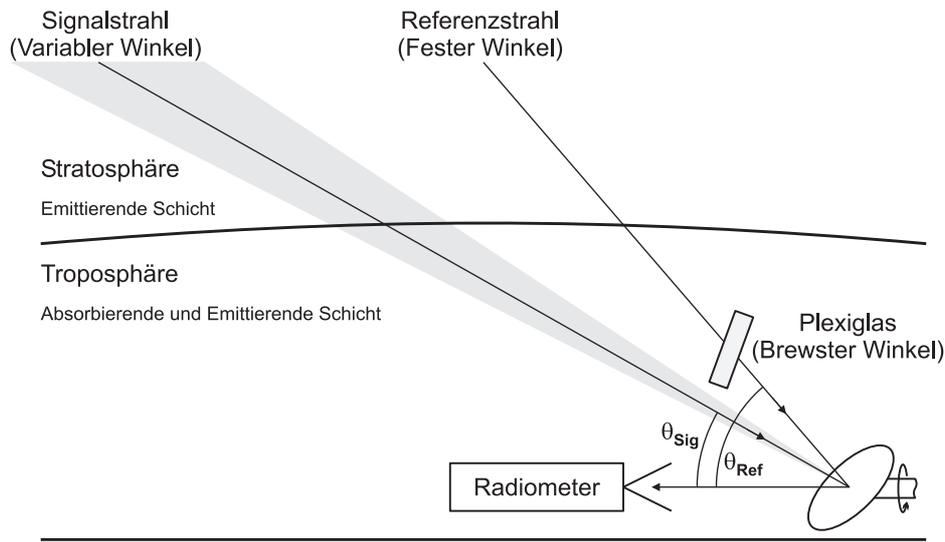


Abbildung 4.2: Die Beobachtungsgeometrie beim Referenzstrahl Verfahren. Gemessen wird unter einem hohen, festen Referenzwinkel sowie einem variablen flacheren Signalwinkel. Die breitbandige Leistung der beiden Atmosphärischen Strahlen wird durch Auswahl eines geeigneten Signalwinkels angepaßt. Eine Plexiglasplatte im Referenzstrahl erzeugt dabei durch thermische Emission einen Ausgleich für den geringeren Weg, den der Referenzstrahl durch die Atmosphäre zurücklegt.

In Abbildung 4.2 ist die Beobachtungsgeometrie für ein typisches Radiometer nach dem Referenzstrahl Verfahren abgebildet. Gemessen wird ein atmosphärisches Referenzsignal unter einem festen Referenzwinkel  $\theta_{Ref}$ , der für das Wasserdampf Radiometer mit  $65^\circ$  und das Chlormonoxid Radiometer mit  $60^\circ$  eingestellt ist. Ein zweites Atmosphärensignal wird unter einem variablen Signalwinkel  $\theta_{Sig}$  gemessen. Im Folgenden werden diese Messungen »Signalstrahl« und »Referenzstrahl« genannt. Aufgrund seines längeren Weges durch die Atmosphäre besitzt der Signalstrahl eine größere Intensität, sowie mehr Information über die untersuchte Spezies. Um diesen Unterschied auszugleichen befindet sich im Referenzstrahl eine Plexiglasplatte, die zur Minimierung von Stehwellen unter dem Brewster Winkel angebracht ist – der Brewsterwinkel für Plexiglas mit  $n = 1,6$  beträgt etwa  $58^\circ$ . Sie schwächt das Atmosphä-

rensignal mit der Spurengaslinie ab, gibt gleichzeitig aber durch eigene thermische Emissionen einen breitbandigen zusätzlichen Strahlungsbeitrag. Durch die Wahl eines geeigneten Signalwinkels lassen sich troposphärische Schwankungen derart ausgleichen, daß in beiden Beobachtungsrichtungen die gleiche Signalleistungen gemessen werden. Die Vorgehensweise zur Bestimmung des Winkels ist in Abbildung 4.3 skizziert und wird etwas ausführlicher noch einmal in Anhang B beschrieben.

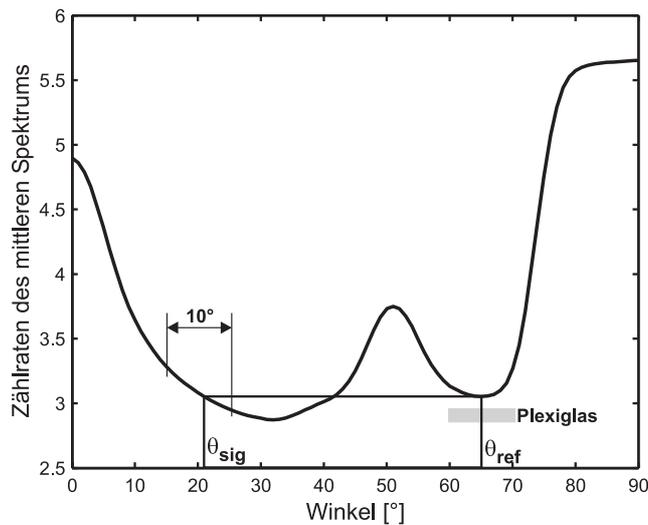


Abbildung 4.3: Eine Messung des Winkelbereiches von 0 bis 90° mit dem Wasserdampf Radiometer. Auf der Ordinate ist das mittlere gemessene Spektrum als Maß für die Leistung aufgetragen. Zum Referenzwinkel von 65° ergibt sich hierbei ein Signalwinkel von etwa 21° bei dem man ein gleiche Intensität mißt – der erlaubte Signalwinkelbereich ist markiert. Der Anstieg bei 50° wird durch eine Metallschiene hervorgerufen, auf der die Plexiglasplatten aufliegen.

Die Empfänger Ausgangsleistungen der beiden Signale sind dann analog Gleichung (4.8) gegeben durch:

$$S = P_{\text{Ausgang}}^{\text{Sig}} = [G \cdot (T_{\text{Antenne}}^{\text{Sig}} + T_{\text{SYS}}^{\text{Sig}})]^{\beta} \quad (4.12)$$

$$R = P_{\text{Ausgang}}^{\text{Ref}} = [G \cdot (T_{\text{Antenne}}^{\text{Ref}} + T_{\text{SYS}}^{\text{Ref}})]^{\beta} \quad (4.13)$$

Alle frequenzabhängigen Nichtlinearitäten einzelner Komponenten des Radiometers stecken in  $\beta$ . Die Systemrauschtemperaturen in Signal- und Referenzrichtung  $T_{\text{SYS}}^{\text{Sig}}$  und  $T_{\text{SYS}}^{\text{Ref}}$  beinhalten Gerätebeiträge aber auch alle troposphärischen Beiträge sowie die kosmische Hintergrundstrahlung während die

Antennentemperaturen  $T_{\text{Antenne}}^{\text{Sig}}$  und  $T_{\text{Antenne}}^{\text{Ref}}$  lediglich Beiträge durch die Linienstrahlung beinhalten.

Zur Minimierung von Verstärkerschwankungen und Nichtlinearitäten mißt man die »Differenzspektrum« genannte Größe:

$$D = \frac{S - R}{R} \quad (4.14)$$

Unter der Voraussetzung, daß innerhalb der Meßzeit keine Verstärkerschwankungen auftreten deren Periode kürzer ist als die Meßzeit selbst lassen sich die Gleichungen (4.12) und (4.13) mit Gleichung (4.14) entwickeln zu:

$$\beta \cdot (T_{\text{Antenne}}^{\text{Sig}} - T_{\text{Antenne}}^{\text{Ref}}) = \left( \frac{S - R}{R} \right) \cdot T_{\text{SYS}}^{\text{Ref}} - \beta \cdot (T_{\text{SYS}}^{\text{Sig}} - T_{\text{SYS}}^{\text{Ref}}) \quad (4.15)$$

$\beta$  geht hier nur noch linear ein, zudem hebt sich aufgrund der Vorgaben der letzte Term – die Differenz der beiden Systemrauschktemperaturen – auf. Vernachlässigt man die Nichtlinearitäten ( $\beta = 1$ ) vereinfacht sich Gleichung (4.15) weiter zu:

$$T_{\text{Antenne}}^{\text{Sig}} - T_{\text{Antenne}}^{\text{Ref}} = \left( \frac{S - R}{R} \right) \cdot T_{\text{SYS}}^{\text{Ref}} \quad (4.16)$$

Wie weiter oben schon angedeutet beinhaltet  $T_{\text{SYS}}^{\text{Ref}}$  nicht nur die Systemrauschktemperatur  $T_{\text{SYS}}$  des Empfangssystems, sondern auch den thermischen Kontinuumsbeitrag der troposphärischen Hintergrundstrahlung  $T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Ref}}$ :

$$T_{\text{SYS}}^{\text{Ref}} = \gamma \cdot [T_{\text{SYS}} + T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Ref}}] \quad (4.17)$$

mit  $\gamma$  einer Gerätekonstanten für die Seitenbandunterdrückung des Radiometers – da die verwendeten Radiometer im Einseitenband Betrieb verwendet werden ist  $\gamma \approx 1$ .  $T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Ref}}$  kann im Referenzstrahl Verfahren nicht direkt gemessen werden, so daß zur Bestimmung ein in Anhang B beschriebenes iteratives Verfahren verwendet wird.

Für die genauen mathematischen Herleitungen sowie die Fehlerdiskussion des Referenzstrahl Verfahrens sei hier die vorhergehenden Arbeiten zum Chlormonoxid Radiometer von Raffalski (1993) und Barry (2000) verwiesen.

Abschließend sollte an dieser Stelle noch angemerkt werden, daß unsere Messungen spektral aufgelöst sind. Das in Ny-Ålesund verwendete Spektrometer besitzt 1728 einzelne Kanäle mit zugeordneten Frequenzen  $\nu$ , für die

jeweils eigene Rechnungen durchgeführt werden müssen mit jeweils eigenen Systemrauschtemperaturen  $T_{\text{SYS}}(\nu)$ , Signaltemperaturen  $T_{\text{Antenne}}(\nu)$ , Verstärkungsfaktoren  $G(\nu)$  und Nichtlinearitäten  $\beta(\nu)$ . Gleiches gilt selbstverständlich auch für das Totalpower Verfahren.

## 4.6 Referenzstrahl oder Totalpower Verfahren

Im Idealfall werden durch den Leistungsabgleich des Referenzstrahl Verfahrens die Nichtlinearitäten des Empfängers minimiert, sowie die Einflüsse der Troposphäre gänzlich eliminiert.

Jedoch ergeben sich, wie im folgenden Abschnitt noch gezeigt wird, große Probleme beim Zusammenfassen von Meßdaten, die unter verschiedenen Signalwinkeln gemessen wurden. Abhilfe kann hier gegebenenfalls eine Abwandlung des Referenzstrahl Verfahrens, die »Balancierte Kalibrierung« wie bei Krupa (1997) beschrieben, schaffen. Bei diesem Verfahren wird das atmosphärische Signal mit einer temperaturvariablen Schwarzkörper Last verglichen. Der Vorteil ist, daß der Signalwinkel konstant bleiben kann und so ohne Umrechnungsprobleme alle Meßdaten, die den entsprechenden Qualitätskriterien genügen, integriert werden können. Als technischer Nachteil ergibt sich jedoch die variable Last. Hierbei handelt es sich üblicherweise um eine warme und kalte Kalibrationslast, die mittels eines drehbaren Polarisationsgitters auf die gewünschte Temperatur zusammengemischt werden – sie ist in den entsprechenden Radiometern die Hauptquelle für quasioptische Stehwellen.

Als zweiter großer Nachteil des Referenzstrahl Verfahrens ergibt sich die Kalibration des Differenzspektrums. Weder der Kontinuumsbeitrag noch der Signaluntergrund lassen sich direkt messen und müssen daher unter Zuhilfenahme von recht ungenau bestimmbar Daten wie zum Beispiel der Transmission der Plexiglasplatten oder eventuell mehrere Stunden zurückliegenden Systemrauschtemperaturmessungen berechnet werden. Die Differenzspektren lassen sich damit zwar kalibrieren – sie besitzen also auf der Leistungsachse die richtigen Helligkeitstemperaturen –, ihnen fehlt aber der durch die Troposphäre und die Flanken anderer Spurengaslinien und Kontinua verursachte Signaluntergrund. Diese Probleme lassen sich in den Vorwärtsprogrammen be-

rücksichtigen, was die Auswertung letztendlich aber sehr viel komplizierter macht.

Das Totalpower Verfahren besitzt diese beiden Nachteile nicht. Alle Spektren können unter dem gleichen Signalwinkel gemessen werden, sie sind kalibriert und besitzen ihren Signaluntergrund.

Bei Klein (1993) wurden beide Verfahren ausgiebig miteinander verglichen, wobei er zu dem Schluß kommt, daß das Referenzstrahl Verfahren bei schwachen Spurengaslinien dem Totalpower Verfahren überlegen ist. Laut den dort durchgeführten Abschätzungen liegt der typische Fehler bei Totalpower Messungen im Bereich bis maximal 1 K, bei Referenzstrahl Messungen aber nur bis etwa 10mK – abhängig von einigen nur ungenügend bestimmbar Systemparametern wie zum Beispiel den Verstärkerschwankungen sowie den wechselhaften atmosphärischen Bedingungen.

Diese Abschätzung ist jedoch kein Beweis gegen die Verwendung des Totalpower Verfahrens zur Detektion von schwächeren Spurengaslinien, denn im Zweifelsfall kommt es auf die Details des verwendeten Meßgerätes beziehungsweise der Umgebungsbedingungen an. Einige andere 22 GHz Wasserdampf Radiometer arbeiten ebenfalls mit der Totalpower Methode – siehe dazu zum Beispiel Jarchow (1998). In Abschnitt 8.2 wird anhand von im Sommer 2001 durchgeführten Testmessungen noch gezeigt, daß das Totalpower Verfahren auch für unser Radiometer eine brauchbare Alternative bei der Messung von Wasserdampfspektren ist.

## 4.7 Zusammenfassung der Meßdaten

Damit die mit der Referenzstrahl Methode gewonnenen Spektren aufaddiert werden können, müssen sie auf einen gemeinsamen Beobachtungswinkel gebracht werden. Nach Parrish et al. (1988) werden die Chlormonoxid Differenzspektren dazu mittels eines Zwei-Schichten-Modells der Atmosphäre auf die Zenit-Helligkeitstemperatur umgerechnet. Chlormonoxid befindet sich in Höhenschichten von 15 bis etwa 55km mit einem für uns interessanten Maximum bei etwa 20km. In dieser ersten stratosphärischen Schicht wird die Linienstrahlung emittiert und auf ihrem Weg durch die zweite troposphärische Schicht durch Wasserdampf absorbiert.

Von besonderer Bedeutung sind dabei die »Airmass Faktoren«. Unter Beachtung der sphärischen Geometrie können mit ihnen Beobachtungen, die in einer Höhe  $h$  über dem Erdboden unter einem Winkel  $\vartheta$  gemacht wurden auf Zenit Beobachtungsgeometrie umgerechnet werden:

$$A(\vartheta, h) = \frac{R_{\text{Erde}} + h}{\sqrt{(R_{\text{Erde}} + h)^2 - (R_{\text{Erde}} \cdot \cos \vartheta)^2}} \quad (4.18)$$

mit  $R_{\text{Erde}}$  als dem Erdradius.

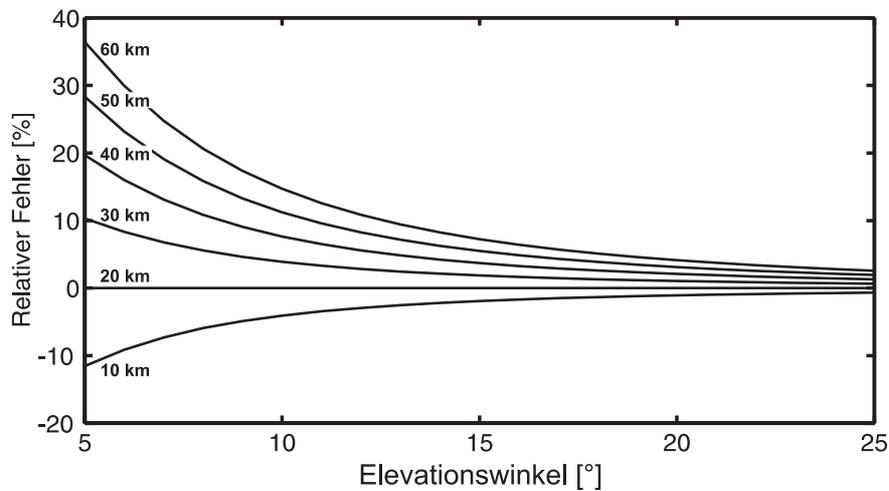


Abbildung 4.4: Der relative Fehler bei der Umrechnung eines Spektrums auf Zenit Beobachtungsgeometrie. Die Referenzhöhe  $h$  für den Airmass-Faktor beträgt hier 20 km.

Wie in Abbildung 4.4 erkennbar ist, läßt sich eine Umrechnung mittels der Airmass-Faktoren nur für genau eine Referenzhöhe fehlerfrei durchführen; für alle anderen Höhenschichten ergeben sich abhängig vom Elevationswinkel relative Fehler, die um so größer sind, je niedriger der Winkel ist. Es wird außerdem deutlich, daß nur Messungen, die unter einem ähnlichen Elevationswinkel gemessen wurden unter einem mittleren Winkel ohne genaue Umrechnung zusammengefaßt werden sollten.

Die auf Zenit umgerechneten Signale für den Signal- und Referenzstrahl ergeben sich damit zu:

$$T_{\text{Antenne}}^{\text{Sig}} = T_{r_F} \cdot T_{\text{Linie}}^{\text{Zenit}} \cdot A_{\text{SS}} \cdot e^{-A_{\text{ST}} \cdot \tau_z} \quad (4.19)$$

$$T_{\text{Antenne}}^{\text{Ref}} = T_{r_F} \cdot T_{\text{Linie}}^{\text{Zenit}} \cdot A_{\text{RS}} \cdot e^{-A_{\text{RT}} \cdot \tau_z} \cdot e^{-\tau_d} \quad (4.20)$$

mit den Airmass Faktoren

$$A_{SS} = A(\theta_{\text{Sig}}, h_{\text{Str}}) \quad (4.21)$$

$$A_{ST} = A(\theta_{\text{Sig}}, h_{\text{Trop}}) \quad (4.22)$$

$$A_{RS} = A(\theta_{\text{Ref}}, h_{\text{Str}}) \quad (4.23)$$

$$A_{RT} = A(\theta_{\text{Ref}}, h_{\text{Trop}}) \quad (4.24)$$

sowie  $h_{\text{Str}}$  und  $h_{\text{Trop}}$  den mittleren Höhenwerten für die emittierende Schicht in der Stratosphäre und der absorbierenden Schicht in der Troposphäre,  $\tau_z$  der atmosphärischen Opazität in Blickrichtung Zenit,  $\tau_d$  der Opazität der Abschwächerplatte im Referenzstrahl sowie  $T_{\text{Linie}}^{\text{Zenit}}$  der Helligkeitstemperatur der Spektrallinie oberhalb der Troposphäre in Blickrichtung Zenit sowie  $Tr_{\text{F}}$  der Transmission des Styroporfensters. Die Opazität der Abschwächerplatte und die Fenstertransmission muß einmal gemessen werden, zur Bestimmung der Zenitopazität wird ein in Anhang B beschriebenes Verfahren angewandt.

Setzt man diese Gleichungen in Gleichung (4.16) ein, so ergibt sich für die auf Zenit Richtung kalibrierte Linie  $T_{\text{Linie}}^{\text{Zenit}}$  folgende Formel:

$$T_{\text{Linie}}^{\text{Zenit}} = \frac{T_{\text{SYS}}^{\text{Ref}}}{Tr_{\text{F}} \cdot (A_{SS} \cdot e^{-A_{ST} \cdot \tau_z} - A_{RS} \cdot e^{-A_{RT} \cdot \tau_z} \cdot e^{-\tau_d})} \cdot \frac{S - R}{R}. \quad (4.25)$$

Für Wasserdampf mit seinem über die Höhe abfallenden Volumenmischungsverhältnis und der großen troposphärischen Konzentrationen läßt sich das Zwei-Schichten-Modell nicht anwenden. Hier verfolgen wir einen anderen Ansatz, bei dem die unkalibrierten Differenzspektren in das Auswerteverfahren eingehen. Dafür müssen wir jedoch ein komplizierteres Modell als beim Chlormonoxid in Kauf nehmen, bei dem das Meßverfahren nachgestellt wird wobei sowohl Signalstrahl als auch Referenzstrahl getrennt berechnet werden müssen (siehe dazu den Abschnitt 5.6 im folgenden Kapitel). Da hier keine explizite Umrechnung der Winkel stattfindet, können auch nur Messungen zusammengefaßt werden die unter einem ähnlichen Signalwinkel aufgezeichnet wurden. Dieses schränkt die Zahl der verfügbaren Spektren drastisch ein, was sich gerade bei wechselhafter Witterung auf die mögliche Zahl der bestimmten Spurengasprofile auswirkt.



## 5 Atmosphärische Mikrowellenstrahlung

In diesem Kapitel geht es um die Entstehung der im Mikrowellenbereich liegenden Spektrallinien, den Strahlungstransfer durch die Atmosphäre sowie die verschiedenen Einflüsse auf die Linienform. Mit Hilfe dieser Informationen läßt sich aus einem gemessenen Spektrum auf die Höhenverteilung des zugrundeliegenden Spurengases schließen – die dazu von uns verwendeten Modelle und Verfahren werden ebenfalls beschrieben.

Sofern nicht anders angegeben sei für weitergehende Informationen an dieser Stelle auf Elachi (1987), Janssen (1993) und insbesondere Rodgers (2000) sowie auf die vorhergehenden Arbeiten der RAM und ASUR Arbeitsgruppen.

### 5.1 Spektrallinien

Die Quelle der von uns untersuchten Spektrallinien sind die thermisch angeregten Rotationsübergänge der atmosphärischen Spurengasmoleküle Wasserdampf bei 22,23508 GHz und Chlormonoxid bei 204,3519 GHz. Moleküle die ein Dipolmoment besitzen können mit einem elektromagnetischen Wellenfeld durch Rotationsübergänge in Wechselwirkung treten und Energie absorbieren und abgeben. Beim Übergang vom angeregten Energieniveau  $E_2$  in den niederen Zustand  $E_1$  ergibt sich mit  $h$  dem Planckschen Wirkungsquantum gemäß

$$\nu_{21} = (E_2 - E_1)/h \quad (5.1)$$

eine wohldefinierte Spektrallinie der Frequenz  $\nu_{21}$ . Es gibt zweiatomige Moleküle wie zum Beispiel Chlormonoxid, bei denen die einzelnen Emissionslinien abhängig vom Trägheitsmoment äquidistant zueinander liegen und es gibt asymmetrische Moleküle mit mindestens zwei unterschiedlichen Trägheitsmomenten der Hauptträgheitsachsen wie zum Beispiel Wasserdampf und Ozon – die Auswahlregeln für die Quantenzahlen führen bei ihnen zu Spektren mit zahlreichen Spektrallinien.

Im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht wird die emittierte Strahlungsintensität eines schwarzen Strahlers der physikalischen Temperatur  $T$  bei der Frequenz  $\nu$  durch die Planck Funktion  $B(\nu, T)$  beschrieben:

$$B(\nu, T) = \frac{2 \cdot h \cdot \nu^3}{c^2} \cdot \frac{1}{e^{h \cdot \nu / (k_B \cdot T)} - 1} \quad (5.2)$$

mit  $k_B$  der Boltzmann Konstante und  $c$  der Lichtgeschwindigkeit im Medium. Für niedrige Frequenzen beziehungsweise geringen Temperaturen kann die Planck Funktion durch Reihenentwicklung des Exponentialterms in die Rayleigh-Jeans Näherung überführt werden:

$$B(\nu, T) \approx \frac{2 \cdot \nu^2 \cdot k_B}{c^2} \cdot T. \quad (5.3)$$

Für die in der Mikrowellenradiometrie üblichen Größen gilt daher ein weitgehend linearer Zusammenhang zwischen der thermodynamischen Temperatur und der Strahlungsintensität eines schwarzen Körpers.

Für Frequenzbereiche in denen die Rayleigh-Jeans Näherung nicht mehr gilt, kann die Planck Funktion auch künstlich durch Einführung der sogenannten »Helligkeitstemperatur« als Ersatz für die physikalische Temperatur linearisiert werden:

$$B(\nu, T) = \frac{2 \cdot \nu^2 \cdot k_B}{c^2} \cdot T_b(\nu, T) \quad (5.4)$$

mit

$$T_b(T, \nu) = \frac{h \cdot \nu}{k_B} \cdot \frac{1}{e^{h \cdot \nu / (k_B \cdot T)} - 1} \quad (5.5)$$

als der Helligkeitstemperatur in der alle Nichtlinearitäten »versteckt« sind.

In der Mikrowellentechnik hat sich zudem auch die Verwendung der Helligkeitstemperatur als Größe für die Strahlungsintensität eingebürgert. Die Umrechnung einer Intensität  $I(\nu)$  in die Helligkeitstemperatur  $T_b(T, \nu)$  erfolgt gemäß Gleichung (5.6), wobei es sich hier im eigentlichen Sinne nur um eine Umskalierung und Umbenennung der Intensität handelt:

$$T_b(T, \nu) = \frac{c^2}{2 \cdot k_B \cdot \nu^2} \cdot I(\nu) \quad (5.6)$$

Neben den diskreten Linienspektren gibt es auch eine Kontinuumsabsorption. Im Mikrowellenbereich bis 400 GHz, insbesondere bei bodengebundenen Messungen, ist das Wasserdampf-Kontinuum entscheidend. Es ergibt sich

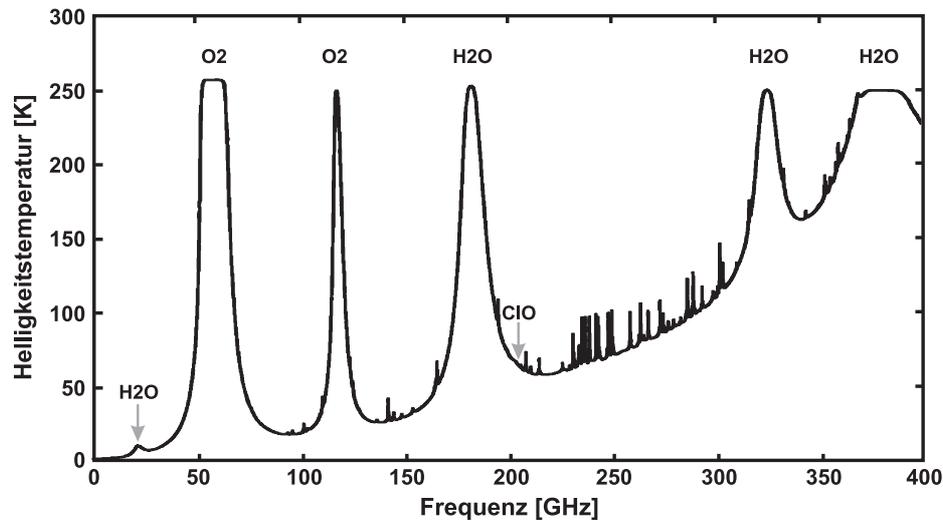


Abbildung 5.1: Ein synthetisches Spektrum für den Frequenzbereich von 0 bis 400 GHz. Bei den ausgeprägten Linien handelt es sich um Sauerstoff und Wasserdampf, die kleineren Linien stammen von Ozon. Die in dieser Arbeit untersuchten Spektrallinien sind mit einem Pfeil hervorgehoben. Bei dieser Auflösung ist von ihnen lediglich die 22 GHz Wasserdampf Linie mit ihrem breiten troposphärischen Buckel zu erkennen.

durch die Addition der Flügel entfernterer Wasserdampflinien, die aufgrund des hohen troposphärischen Wasserdampfgehaltes stark ausgeprägt sind. Die nichtresonante Absorption durch O<sub>2</sub> und die stoßinduzierten Absorptionen von N<sub>2</sub> und CO<sub>2</sub> erzeugen ebenfalls Kontinua, die in unserem Fall jedoch vernachlässigbar sind. Zur genaueren Bestimmung der verschiedenen Kontinuumseinflüsse gibt es mehrere Modelle, die sehr ausführlich bei Bühler (1999) beschrieben sind – insbesondere das dort beschriebene Modell MPM93 von Liebe wurde in Abschnitt 3.3 auch zur Berechnung des Einflusses von Wasserdampf auf Linienstärken verwendet.

Im Bereich einzelner Spektrallinien sowie der von uns verwendeten geringen spektralen Bandbreiten kann das Kontinuum als linear ansteigender oder abfallender Untergrund an die gemessenen Spektren angepaßt werden.

Abbildung 5.1 zeigt ein synthetisches Spektrum des Frequenzbereiches von 0 bis 400 GHz. Man erkennt zahlreiche Spektrallinien; bei den großen handelt es sich ausnahmslos um Sauerstoff- und Wasserdampflinien, die kleineren sind Ozonlinien. Von den untersuchten Linien ist nur die 22 GHz Wasserdampflinie zu erkennen; die 204 GHz Chlormonoxid Linie ist bei dieser Skalierung zu klein. Der mit zunehmender Frequenz stattfindende Anstieg des Spek-

trums ist auf die Kontinuumsabsorption durch Wasserdampf zurückzuführen; ab 400 GHz ist die Atmosphäre für bodengebundene Mikrowellenmessungen weitestgehend optisch dicht.

## 5.2 Strahlungstransport

Auf ihrem Weg vom Ort der Entstehung in der Stratosphäre bis zu Empfänger am Boden ändert sich die Strahlungsintensität aufgrund ihrer Wechselwirkungen mit der Atmosphäre. Es kann zu Emission, Absorption und Streuung kommen. Letztere kann üblicherweise vernachlässigt werden, denn die Effekte sind sehr klein und wirken sich lediglich bei Regen und Schneefall merklich aus – dann sind die Meßbedingungen aber ohnehin nicht ausreichend für brauchbare Ergebnisse.

Die differentielle Strahlungstransfergleichung zeigt die Änderung der Intensität  $I(\nu, h)$ , abhängig von der Frequenz  $\nu$  beim Durchgang einer homogenen atmosphärischen Schicht der Dicke  $dh$  in der Höhe  $h$ :

$$\frac{d}{dh} I(\nu, h) = \underbrace{-\alpha(\nu) \cdot I(\nu, h)}_{\text{Absorption}} + \underbrace{\varepsilon(\nu) \cdot B(\nu, T(h))}_{\text{Emission}} \quad (5.7)$$

mit  $\alpha(\nu)$  und  $\varepsilon(\nu)$  den Absorptions- und Emissionskoeffizienten. Gemäß dem Kirchhoffschen Gesetz sind im thermodynamischen Gleichgewicht die Wahrscheinlichkeiten für Emission und Absorption gleich, so daß gilt:  $\alpha(\nu) = \varepsilon(\nu)$ . Die Absorptionskoeffizienten setzen sich aus Beiträgen aller in der Nähe der Frequenz  $\nu$  absorbierenden Moleküle zusammen:

$$\alpha(\nu, h) = \sum_{mol} \alpha_{mol}(\nu, h) \quad (5.8)$$

Unter der Annahme, daß die Atmosphäre aus zahlreichen infinitesimal dünnen Schichten besteht, läßt sich Gleichung (5.7) integrieren und unter Einbeziehung von Gleichung (5.3) folgendermaßen umschreiben:

$$I(\nu, h_0) = I(\nu, h_\infty) \cdot e^{-\tau_\nu(h_\infty)} + \int_{h_0}^{h_\infty} \alpha(\nu, h) \cdot B(\nu, T) \cdot e^{-\tau_\nu(h)} dh \quad (5.9)$$

Dabei sind als Grenzen die Beobachterhöhe  $h_0$  und der Oberrand der beobachteten Atmosphäre  $h_\infty$  angegeben,  $I(\nu, h_\infty)$  ist die kosmische Hintergrundstrahlung, die von außen in die Atmosphäre eindringt und  $\tau(\nu, h)$  steht für die Opazität der Atmosphäre (auch »optische Dicke« genannt). Es handelt sich dabei um das Integral aller höhenabhängigen Absorptionskoeffizienten über den Ausbreitungsweg der Strahlung:

$$\tau(\nu, h) = \int_{h_0}^h \alpha(\nu, h) dh \quad (5.10)$$

Zur Berechnung der Integralgleichung (5.9) mittels eines Computers wird die Atmosphäre in  $n$  homogene Schichten unterteilt, womit sich die diskretisierte Gleichung folgendermaßen approximieren läßt:

$$I(\nu, h_0) = I(h_\infty) \cdot Tr(h_\infty) + \sum_{i=1}^n B_i(\nu, T) \cdot (Tr_i - Tr_{i-1}) \quad (5.11)$$

mit den Transmissionen

$$Tr_i = \exp\left(-\sum_{j=1}^i \alpha'_j x_j\right) \quad (5.12)$$

wobei  $\alpha'_j$  die Absorptionsquerschnitte (Absorptionskoeffizient pro VMR des reinen Stoffes) und  $x_j$  die Volumenmischungsverhältnisse des betrachteten Spurenstoffes in der Höhenschicht  $j$  sind. Innerhalb jeder Schicht werden Temperatur und Absorptionskoeffizienten als konstant angenommen.

### 5.3 Linienform

Sind die Absorptionskoeffizienten  $\alpha(\nu, h)$  bekannt, sollte sich aus Gleichung (5.9) das am Boden empfangene Signalspektrum berechnen lassen. Die am Boden empfangenen Spektrallinien der Spurengase sind nicht unendlich schmale Delta-Spitzen sind, sondern einige im folgenden noch beschriebene Mechanismen führen zu einer Veränderung der Linienform. Diese Tatsache werden wir in Abschnitt 5.4 nutzen um aus den am Boden empfangenen verbreiterten Linien ein Spurengasprofil zu errechnen.

Der angeregte Zustand eines ungestörten Teilchens hat eine endliche Lebensdauer und zerfällt spontan nach einer Zeit  $\Delta t$ . Gemäß der Heisenbergschen Unschärferelation führt dieses zu einer Frequenzverschmierung der Spektrallinie und damit zu der sogenannten »natürlichen Linienbreite«. Die natürlichen Linienbreiten liegen im Bereich von etwa  $10^{-5}$  Hz und sind damit gegenüber anderen Verbreiterungsmechanismen vernachlässigbar.

Die thermische Eigenbewegung der Moleküle relativ zum Beobachter führt über den Doppler Effekt zur »Doppler Verbreiterung«. Sie ist frequenzabhängig und liegt typischerweise im Bereich von  $10^{-6}$  mal der Mittenfrequenz der Spektrallinie. In Höhenbereichen unterhalb von etwa 60 km ist sie daher nicht von Bedeutung.

Im Bereich bis 60 km dominiert die »Druckverbreiterung«. Stöße der Spurengasmoleküle mit anderen Molekülen verkürzen die Lebensdauer eines angeregten Zustandes und führen aufgrund der Unschärferelation zu einer Verbreiterung der Spektrallinie. Je dichter ein Gas ist, desto mehr Kollisionen finden statt und um so breiter sind die Strahlungsbeiträge aus der entsprechenden Höhenschicht: Beiträge aus tiefen Atmosphärenschichten sind damit stärker druckverbreitert als Beiträge aus höheren Schichten. Eine besondere Form der Druckverbreiterung ist die »Eigen-Druckverbreiterung« (auch »Eigenverbreiterung«). Hierbei wirken nur Stöße der Spurengasmoleküle untereinander, so daß nicht der Umgebungsluftdruck sondern der Partialdruck des Spurengases entscheidend ist. Gerade beim Wasserdampf, der einen starken Konzentrationsabfall mit der Höhe aufweist ist sie von Bedeutung.

Als letzten wichtigen Einfluß auf die Linienform sei hier noch die »Druckverschiebung« genannt. Hierbei wird die Resonanzfrequenz abhängig vom Druck verschoben, was bei Integration über alle Höhenschichten hinweg zu einer stark asymmetrischen Verformung der Linie führt. Sie tritt nur bei hohen Drücken auf; abhängig von geringen Molekülabständen wird sie durch eine Veränderung der molekularen Wellenfunktionen verursacht.

Die zur Berechnung der Opazität in Gleichung (5.10) benötigten Absorptionskoeffizienten lassen sich unter Einbeziehung der Linienform folgendermaßen schreiben:

$$\alpha(\nu, h) = n(h) \cdot \sum_j S_j(T) \cdot f_j(\nu, \nu_{RF}) \quad (5.13)$$

Summiert wird über alle  $j$  Übergänge des Moleküls, mit  $n(h)$  als Konzentration des Spurenstoffes in der Höhe  $h$ ,  $S_j(T)$  der temperaturabhängigen Linienstärke

und  $f_j(v, v_{RF})$  einer Linienformfunktion, durch welche die Veränderung der Linienform beschreiben wird.

Die Linienformfunktion für die Dopplerverbreiterung ergibt sich aus der Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung zu einer Gaußfunktion:

$$f_D(v, v_{RF}) = \frac{1}{\sqrt{\pi \cdot \sigma_D}} \cdot e^{-((v-v_{RF})/\sigma_D)^2} \quad (5.14)$$

mit

$$\sigma_D = v_{RF} \cdot \sqrt{2 \cdot k_B \cdot T / m \cdot c^2} \quad (5.15)$$

als Dopplerverbreiterungsparameter aus dem sich mit  $\Delta v_D = 2 \cdot \sigma_D \cdot \sqrt{\ln 2}$  die Halbwertsbreite der dopplerverbreiterten Linie ergibt.

Unter der Annahme, daß die Zeit zwischen den Stößen klein gegenüber der Stoßzeit ist (der sogenannten »Impact Approximation«) kann die Druckverbreiterung durch die Van-Vleck und Weißkopf Formfunktion dargestellt werden:

$$f_p(v, v_{RF}) = \frac{1}{\pi} \left( \frac{v}{v_{RF}} \right)^2 \cdot \left[ \frac{\Delta v_p}{(v_{RF} - v)^2 + \Delta v^2(p)} + \frac{\Delta v_p}{(v_{RF} + v)^2 + \Delta v^2(p)} \right] \quad (5.16)$$

mit  $\Delta v_p = \gamma(T) \cdot p$  als Halbwertsbreite der druckverbreiterten Linie, wobei es sich bei  $\gamma(T) = \gamma(T_0) \cdot (T_0/T)^\kappa$  um den temperaturabhängigen Druckverbreiterungsparameter handelt. Bei Anwendung der Eigenverbreiterung ergibt sich  $\Delta v_p = \gamma(T) \cdot p_L + \gamma_E(T) \cdot p_E$  mit  $\gamma_E$  dem Parameter der Eigendruckverbreiterung,  $p_E$  dem Partialdruck des Spurengases sowie  $p_L = p - p_E$ . Der Parameter  $\gamma$  sowie der Exponent  $\kappa$  muß für jede Spezies bei der Referenztemperatur  $T_0$  im Labor bestimmt werden und findet sich in den entsprechenden Tabellenwerken.

Die druckabhängige Verschiebung der Übergangsfrequenz  $v_{RF}$  zur neuen Frequenz  $v_{RF,S}$  kann nach Pickett (1980) durch folgende Formel dargestellt werden:

$$v_{RF,S} = v_{RF} - v_S \quad \text{mit} \quad v_S = p \cdot \delta \cdot \left( \frac{T_0}{T} \right)^{\frac{1}{4} + \frac{3}{2}\kappa} \quad (5.17)$$

mit  $\delta$  einem durch Labormessungen zu bestimmenden Druckverschiebungsparameter. Untersuchungen die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden zeigten, daß die Druckverschiebung beim Wasserdampf keine wichtige

Rolle spielt. Bei der 22 GHz Linie gibt es nur eine nennenswerte Eigen-Druckverschiebung, doch diese wirkt sich aufgrund des exponentiell abfallenden Wasserdampf VMR nur in ganz geringen Höhenbereichen aus die für unsere Mikrowellenradiometrie nicht mehr zu erfassen sind.

Die Faltung der Gleichungen (5.14) und (5.16) ergibt die Voigt Funktion (5.18), in der sowohl Doppler- als auch Druckverbreiterung berücksichtigt sind und die damit für den gesamten Höhenbereich vom Erdboden bis in die Mesosphäre Gültigkeit besitzt:

$$f_V(v, v_{RF}) = \int_{-\infty}^{\infty} f_P(v', v_{RF}) \cdot f_D(v - v', v_{RF}) dv'. \quad (5.18)$$

Die in Gleichung (5.13) eingehende Linienstärke eines Übergangs  $S(T)$  hängt von der Besetzung und den Energien der beteiligten Niveaus sowie den Eigenschaften des Moleküls ab. Sie ergibt sich zu:

$$S_{ij}(T) = \frac{8 \cdot \pi^3 \cdot v_{ij} \cdot \mu_{ij}^2 \cdot g_{ij}}{3 \cdot h \cdot c \cdot Q(T)} \cdot \left[ \exp\left(-\frac{E_j}{k_B} \cdot T\right) - \exp\left(-\frac{E_i}{k_B} \cdot T\right) \right] \quad (5.19)$$

mit  $v_{ij}$  der Linienfrequenz des Überganges von  $i$  nach  $j$ ,  $\mu_{ij}$  dem Übergangsmatrixelement und  $g_i$  dem statistischen Gewicht aufgrund des Kernspins sowie  $Q(T)$  der Zustandssumme. Als Näherung für Gleichung (5.19) gibt Rosenkranz (1993) folgende einfachere Formel an, bei der die Zustandssumme in ihre elektronischen, rotationellen und vibronischen Anteile zerlegt wird:

$$S(T) = S'(T_0) \cdot Q_{el}(T)^{-1} Q_{rot}(T)^{-1} Q_{vib}(T)^{-1} \cdot \exp(b(1 - T_0/T)) \quad (5.20)$$

mit

$$Q_{el}(T) = 1 + \exp\left(-\frac{T_{el}}{T}\right) \quad (5.21)$$

$$Q_{rot}(T) = \left(\frac{T_0}{T}\right)^m \quad (5.22)$$

$$Q_{vib}(T) = \prod_v \left[ 1 - \exp\left(-\frac{T_{vib}}{T}\right) \right]^{-d_v} \quad (5.23)$$

Werte für die Linienstärke  $S'(T_0)$  zur Referenztemperatur  $T_0$ , sowie den Parametern  $b$  für die Linienverbreiterung,  $d_v$  für die Entartung des Vibrationsniveaus und  $m$  dem Parameter für die Freiheitsgrade des Moleküls als auch

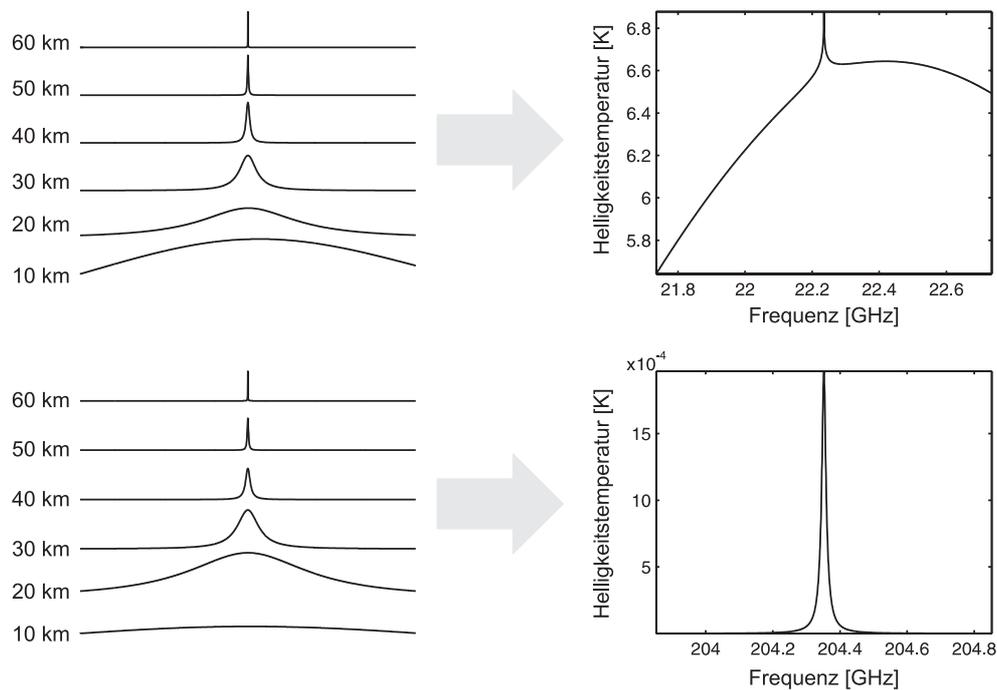


Abbildung 5.2: Links-oben sind Spektren der 22 GHz Wasserdampflinie aus verschiedenen Höhen zwischen 10 und 60 km dargestellt. Man erkennt deutlich die Auswirkungen der Druckverbreiterung; die Asymmetrie ist hierbei kein Effekt der Druckverschiebung sondern ergibt sich direkt aus dem Faktor  $(v/v_{RF})^2$  der Van-Vleck Weißkopf Linienfunktion bei geringen Resonanzfrequenzen. Die Kombination von Spektren aller Höhengschichten ergibt das rechts-oben dargestellte, am Boden meßbare Spektrum. Unten sind analog dazu Spektren der 204 GHz Chlormonoxidlinie aus verschiedenen Höhengschichten dargestellt. Es handelt sich hierbei um synthetische Spektren, die mit dem für die Auswertung verwendeten Vorwärtsprogramm `forward` erzeugt wurden.

die beim Molekül vorhandenen Fundamentalmoden  $T_{el}$  und  $T_{vib}$  kann man den entsprechenden Tabellenwerken entnehmen. Die elektronisch angeregten Zustände wirken sich nur bei Chlormonoxid aus und können bei Wasserdampf vernachlässigt werden.

Abbildung 5.2 zeigt Vorwärtsrechnungen für die in dieser Arbeit verwendeten Spurengaslinien mit den Beiträgen aus verschiedenen Höhengschichten. Die Wasserdampflinie ist im Gegensatz zur Chlormonoxid Linie asymmetrisch. Dieses ist kein Effekt einer Druckverschiebung, sondern läßt sich auf die geringe Resonanzfrequenz zurückführen und ergibt sich direkt aus dem Faktor  $(v/v_{RF})^2$  der verwendeten Van-Vleck und Weißkopf Linienfunktion.

## 5.4 Vorwärtsmodell und Inversion

Im Vorwärtsmodell  $F$  wird aus einer bekannten Spurengasverteilung  $x$  das am Boden empfangene Spektrum  $y$  berechnet:

$$y = F(x) \quad (5.24)$$

Neben dem Strahlungstransfer des beobachteten Spurengases fließen in das Modell auch Informationen über entferntere Spektrallinien sowie die Stehwellen und Geräteigenschaften des Radiometers ein. Im Fall einer für die Beobachtungsfrequenz optisch dünnen Atmosphäre (dem linearen Fall) läßt sich das Vorwärtsproblem formal folgendermaßen beschreiben:

$$y = Kx \quad \text{mit} \quad K_{ij} = \frac{\partial y_i}{\partial x_j} \quad (5.25)$$

als der »Gewichtsfunktionsmatrix«. Jeder Matrixeintrag der Gewichtsfunktionen beinhaltet die Änderung im Spektrum bei einer bestimmten Frequenz, abhängig von der Änderung des Spurenstoffes in einer bestimmten Höhe. Die Berechnung der Gewichtsfunktionen erfolgt unter Verwendung der diskretisierten Strahlungstransfergleichung (5.11):

$$K_k = \frac{\partial F(x)}{\partial x_k} = \frac{\partial I(h_0)}{\partial x_k} \quad (5.26)$$

$$= -\alpha'_k \left( I(h_\infty) \cdot Tr(h_\infty) + \sum_{i=1}^{k-1} B_i (Tr_i - Tr_{i-1}) - B_k \cdot Tr_{k-1} \right) \quad (5.27)$$

Durch Inversion von Gleichung (5.25) sollte man von einem gegebenen Spektrum auf ein Spurengasprofil schließen können; doch es handelt sich hierbei um ein »schlecht gestelltes Problem«, bei dem schon kleine Änderungen im Spektrum wie zum Beispiel das Meßrauschen zu extremen Änderungen im Profil führen können. Aus diesem Grunde wird das Problem durch Nutzung von Vorabinformationen über das Spurengas – den sogenannten »a priori Informationen« – regularisiert.

Das in unserer Arbeitsgruppe verwendete Regularisierungsverfahren ist die »Methode des besten Schätzers« (englisch »Optimal Estimation Method« daher hier abgekürzt mit OEM) von Rodgers (1976, 1990 und 2000). Der beste Schätzer  $\hat{x}$  für ein Spurengasprofil ergibt sich nach Rodgers aus dem Spektrum  $y$  zu:

$$\hat{x} = x_a + S_a K^T (K S_a K^T + S_\epsilon)^{-1} (y - K x_a) \quad (5.28)$$

Dabei ist der Vektor  $x_a$  ein a priori Profil des Spurengases mit der Matrix  $S_a$  als a priori Kovarianz<sup>1</sup>, die Angaben über die erlaubten Schwankungen des zu bestimmenden Profiles um  $x_a$  beinhaltet. Die Matrix  $S_\varepsilon$  ist die Kovarianzmatrix der Messung und beinhaltet Informationen über die Meßfehler. Der Teilausdruck

$$G = S_a K^T (K S_a K^T + S_\varepsilon)^{-1} \quad (5.29)$$

wird »Beitragsfunktionenmatrix« genannt und spielt im folgenden Abschnitt 5.5 bei der Bestimmung von Fehler und Höhengauflösung der Messung eine entscheidende Rolle.

Kann der Strahlungstransfer in guter Näherung als linear betrachtet werden, wie dies bei Chlormonoxid der Fall ist, läßt sich  $\hat{x}$  aus Gleichung (5.28) direkt bestimmen, da alle Matrizen konstant sind. Ansonsten muß  $\hat{x}$  iterativ bestimmt werden, was bei den meisten schwach nichtlinearen Absorptionslinien mit dem Gauss-Newton Iterationsverfahren möglich ist:

$$\hat{x}_{i+1} = \hat{x}_i + (S_a^{-1} + K_i^T S_\varepsilon^{-1} K_i)^{-1} [K_i^T S_\varepsilon^{-1} (y - F(\hat{x}_i)) - S_a^{-1} (\hat{x}_i - x_a)] \quad (5.30)$$

Durch die Verwendung des a priori Profiles  $x_a$  als Startprofil sollte die Gleichung nach wenigen Schritten konvergieren. Dazu wird in der OEM getestet, ob folgender Ausdruck – die sogenannte »Kostenfunktion« – unter eine Schranke  $\chi^2$  gesunken ist (ein sogenannter »Chi-Quadrat-Test«):

$$\chi^2 = [\hat{x} - x_a] S_a^{-1} [\hat{x} - x_a] + [y - F(x)] S_\varepsilon^{-1} [y - F(x)] \quad (5.31)$$

Anschaulich handelt es sich beim Chi-Quadrat-Test um eine gemeinsame Minimierung der Abweichung des Schätzers zum a priori Profil sowie des Spektrums zum Vorwärtsspektrum, jeweils gewichtet mit den zugehörigen Fehlern. Nur durch die gemeinsame Minimierung kann der beste Schätzer gefunden werden, der dem Spurengasprofil entspricht. Diese gemeinsame Minimierung ist der Kernpunkt der Optimal Estimation Method.

Bei der Wasserdampf inversion ergibt sich ein besonderes Problem aus dem mit der Höhe stark abfallenden Volumenmischungsverhältnis, das am Boden von etwa 5000 ppmv bis zur Tropopause um drei Größenordnungen auf unter

---

<sup>1</sup> Das a priori Profil sowie die zugehörige Kovarianz muß aus zahlreichen voneinander unabhängigen Messungen bestimmt werden.

5 ppmv absinkt. Das berechnete Profil tendiert bei einer großzügigen a priori Kovarianz<sup>2</sup> zu starken Schwingungen, die auch zu einem physikalisch sinnlosen negativen VMR führen können. Zur Stabilisierung der Inversion wurden in diesem Fall die Logarithmen des Spurengasprofils und des a priori Profils sowie eine angepaßte a priori Kovarianz verwendet – damit liegen die Variationen im VMR nur noch im Bereich einer Größenordnung. Eine Folge der Änderungen an Inversion und Vorwärtsmodell ist, daß von den logarithmierten Meßwerten nicht mehr ohne weiteres auf die Kovarianz des berechneten Spurengasprofils geschlossen werden kann, so daß dessen Fehler (wie er im nächsten Abschnitt beschrieben wird) anderweitig abgeschätzt werden muß. An dieser Stelle sei auf Bühler (1999) sowie insbesondere auf Wohltmann (2002) verwiesen, bei dem die Änderungen am Inversionsverfahren mit den entstehenden Problemen in aller Ausführlichkeit nachzulesen sind.

Natürlich muß auch das Vorwärtsmodell so abgeändert werden, daß es mit den logarithmierten Werten arbeiten kann. Dieses führt zu einer erheblichen Nichtlinearität im Strahlungstransport, was dazu führt, daß das Gauss-Newton Verfahren gar nicht oder nicht unbedingt zum minimalen Wert konvergiert. Als Alternative wurde daher bei der Wasserdampfinversion das Levenberg-Marquardt Verfahren verwendet. Hierbei handelt es sich um eine Kombination aus der Gauss-Newton Iteration und dem Gradientenverfahren (im englischen »Steepest Descend« genannt):

$$\hat{x}_{i+1} = \hat{x}_i + [(1 + \Gamma_i)S_a^{-1} + K_i^T S_\varepsilon^{-1} K_i]^{-1} [K_i^T S_\varepsilon^{-1} (y - F(\hat{x}_i)) - S_a^{-1} (\hat{x}_i - \hat{x}_a)] \quad (5.32)$$

$\Gamma_i$  ist ein Steuerungsparameter, der nach jedem Iterationsschritt neu bestimmt wird. Im Fall  $\Gamma \rightarrow 0$  liegt das bestimmte Ergebnis nahe am gesuchten Minimum und der Iterationsschritt tendiert zu einer Gauss-Newton Iteration (bei  $\Gamma = 0$  wird aus Gleichung (5.32) die Gleichung (5.30)); bei  $\Gamma \rightarrow \infty$  tendiert das Verfahren zu einem Gradientenschritt mit dem auch lokale Minima übersprungen werden können. Als Strategie zur Neubestimmung von  $\Gamma$  hat sich folgendes Verfahren nach Press et al. (1990) als sinnvoll erwiesen:

---

<sup>2</sup> Eine zu geringe a priori Kovarianz bewirkt, daß sich das berechnete Spurengasprofil nicht sehr weit vom a priori Profil entfernen darf, was im Extremfall bedeutet, daß man keine Information aus der Inversion gewinnen kann. Es ist daher notwendig die a priori Kovarianz ausreichend groß zu definieren.

- ▷ Sinkt  $\chi^2$  als Ergebnis eines Iterationsschrittes, dann wird der Steuerungsparameter  $\Gamma$  verkleinert und das Profil  $\hat{x}$  wird mit dem Ergebnis des Schrittes neu initialisiert.
- ▷ Steigt  $\chi^2$  als Ergebnis eines Iterationsschrittes an, dann wird der Steuerungsparameter  $\Gamma$  vergrößert, das Profil  $\hat{x}$  wird jedoch nicht mit dem Ergebnis des Schrittes neu initialisiert.

Praktikable Werte für die  $\chi^2$  Schranke sowie für die Größe der Änderungen von  $\Gamma$  müssen experimentell bestimmt werden. Bei der Wasserdampfinversion wird  $\Gamma$  jeweils verdoppelt oder halbiert.

## 5.5 Auflösungsmatrix und Fehler

Gemäß Rodgers (2000) ergibt sich der Zusammenhang zwischen dem unbekanntem, wahren Profil  $x$  und dem Schätzwert  $\hat{x}$  durch:

$$\hat{x} = Ax + (I - A)x_a + G\varepsilon \quad (5.33)$$

mit

$$A = GK \quad (5.34)$$

sowie  $\varepsilon$  dem Meßfehler und  $I$  der Einheitsmatrix.  $A$  wird »Auflösungsfunktionsmatrix« (englisch »Averaging Kernel Matrix« daher abgekürzt mit AVK) genannt. Jede Zeile der quadratischen AVK Matrix entspricht einem der Höhenwerte des besten Schätzers, in den Spalten stehen dazu die entsprechenden Abhängigkeiten zum wahren Profil.

Anschaulich läßt sich Gleichung (5.33) folgendermaßen interpretieren: Der beste Schätzer für das Spurengasprofil setzt sich zusammen aus dem durch die AVK-Matrix verschmierten, wahren Spurengasprofil, zuzüglich einem Beitrag des a priori Profils sowie eines Beitrages durch den Meßfehler.

Der Beitrag  $Ax$  besagt insbesondere, daß jeder Wert für  $\hat{x}$  in einer Höhengschicht über  $A$  mit den Werten für  $x$  aus allen möglichen Höhengschichten verknüpft ist. Die AVK-Matrix macht damit eine Aussage über die Höhengauflösung der Messung; im Idealfall, wenn nur die Diagonalelemente der AVK-Matrix besetzt sind, besitzt man die beste Höhengauflösung. Sie wird nur noch

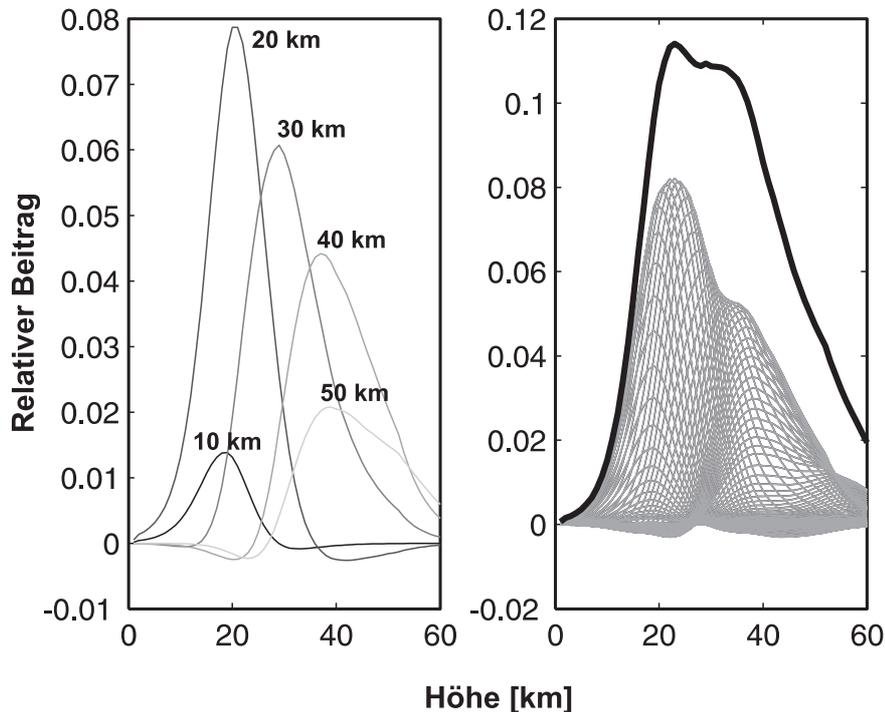


Abbildung 5.3: Beispielfhaft die Inhalte der AVK-Matrix einer Chlormonoxid-Inversion. Links: Der Inhalt von fünf ausgesuchten AVK-Zeilen zu den angegebenen Höhengschichten. Rechts: Alle AVK-Zeilen sowie als dicke Linie die Summe über alle Spaltenelemente (Einhüllende), die zur besseren Darstellung auf 1/10tel ihres tatsächlichen relativen Beitrages skaliert ist (Daten vom 3. März 2000).

durch die Anzahl der Höhengschichten des Vorwärtsmodells begrenzt. Wie in Abbildung 5.3 (Links) jedoch zu erkennen ist, sind die Zeilen einer realen AVK-Matrix nicht mit schmalen Delta-Spitzen, sondern breiteren Funktionen besetzt – deren Halbwertsbreite ist dann ein Maß für die Höhengauflösung der Messung.

Der Beitrag  $(I - A)x_a$  besagt, daß in Höhengschichten mit kleinen Werten in der AVK-Matrix der Beitrag vom a priori Profil stärkeren Einfluß nimmt. Die in Abbildung 5.3 (Rechts) dargestellte dicke Linie ist die Summe aller Spaltenelemente der AVK-Matrix (hier auf 1/10tel skaliert). In Höhengbereichen in denen sie klein ist, besteht die aus der Inversion erzeugte Profilinformatioen aus Beiträgen des a priori Profiles, dort wo sie groß ist ( $\approx 1$ ) hat das a priori Profil hingegen kaum Einfluß.

Bei einem Vergleich zwischen den aus der Inversion gewonnenen Ergebnis-

sen des Radiometers mit den Ergebnissen von Modellen und anderen Meßgeräten ergeben sich aus Gleichung (5.33) folgende Probleme: Zum einen sind die Radiometerprofile zumeist schlechter höhenaufgelöst, zum anderen gibt es einen Einfluß des Apriori Profils. Gemäß Langer (1999) kann die folgende Gleichung (5.35) dazu verwendet werden die höher aufgelösten Spurengasprofile  $x_{mes}$  anderer Meßgeräte oder Modelle mit Hilfe der AVK-Matrix auf die des Radiometers zu reduzieren. Zudem wird auch der Einfluß des a priori Profils mit berücksichtigt:

$$x_{ram} = Ax_{mes} + (I - A)x_{a,ram} \quad (5.35)$$

Durch Verwendung der Auflösungsfunktionenmatrix und der Beitragsfunktionenmatrix läßt sich der Fehler des besten Schätzers des Spurengasprofils  $\hat{x}$  bestimmen:

$$S_{\hat{x}} = S_G + S_R + S_M \quad (5.36)$$

mit

$$S_G = (A - I)S_a(A - I)^T \quad \dots\text{Glättungsfehler} \quad (5.37)$$

$$S_R = GS_\epsilon G^T \quad \dots\text{Rauschfehler} \quad (5.38)$$

$$S_M = GKS_bK^T G^T \quad \dots\text{Modellparameterfehler} \quad (5.39)$$

mit  $S_b$  der Kovarianzmatrix der einzelnen Modellparameter. Der Glättungsfehler ergibt sich, wie weiter oben schon beschrieben aus der Tatsache, daß das wahre Profil durch die AVK-Matrix geglättet wird, während der Rauschfehler direkt aus dem Fehler der Messung stammt. Zusammen ergeben sie den totalen statistischen Fehler der Inversion und machen damit eine Aussage über die Wiederholgenauigkeit der Auswertung. Im Modellparameterfehler sind schließlich all jene Unwägbarkeiten zusammengefaßt, die auf die nicht hinreichend genau bestimmten Parameter des Modells wie zum Beispiel die Temperatur- und Druckprofile zurückzuführen sind – sie können aber nur grob abgeschätzt werden. Üblicherweise wird daher bei der Auswertung nur der statistische Fehler angegeben.

## 5.6 Chlormonoxid- und Wasserdampf-Retrieval

Eine Auswertung läßt sich grob in zwei Schritte unterteilen. Im ersten Schritt werden die Meßdaten aufbereitet sowie Frequenz- und Leistungskalibrierte Spektren erzeugt – hierzu mehr in den Abschnitten 7.1 für Chlormonoxid und 8.1/8.2 für Wasserdampf – im zweiten Schritt werden aus diesen Spektren mittels eines Inversionsverfahrens Spurengasprofile bestimmt. Dieser zweite Schritt wird üblicherweise mit »Retrieval« oder »Inversion« bezeichnet.

Beim Chlormonoxid Retrieval gibt es keine großen Änderungen zu den Vorgehensweisen, die am Institut für Umweltphysik schon von Barry (2000) angewandt wurden und die im Großen und Ganzen auf Sinnhuber (1998) und Wohltmann (1999) zurückgehen. Wie weiter oben schon beschrieben läßt sich die 204 GHz Chlormonoxid-Spurengaslinie aufgrund ihres linearen Strahlungstransfers leicht mit dem Gauss-Newton Verfahren in der Optimal-Estimation-Methode nach Rodgers (2000) bearbeiten. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das bisher verwendete Inversionsprogramm lediglich in ein geschlossenes Gesamtkonzept für die Auswertung eingepaßt – siehe dazu ausführlicher den Anhang A in dem alle für eine Auswertung benötigten Programme vorgestellt werden. Neu sind beim Chlormonoxid die vorhergehende Aufbereitung und Kalibration der Spektren, die für das verwendete Retrieval auf Zenit-Beobachtungsgeometrie umgerechnet und zu täglichen Tag-Nacht Differenzen zusammengefaßt werden.

Als Vorwärtsprogramm wird hier das auf die 204 GHz Line abgeänderte Programm `forward` von Ingo Wohltmann verwendet, welches in der gleichen Form auch bei den verschiedenen Ozon Auswertungen der Arbeitsgruppe verwendet wird. Neben mehreren Stehwellen wird beim Chlormonoxid Retrieval auch der linear fallende Untergrund – ein »Slope« – aufgrund der Flanken entfernterer Spurengaslinien sowie ein konstanter Untergrund – ein »Bias« – angepaßt.

Wie in Abschnitt 5.4 schon beschrieben läßt sich die 22 GHz Wasserdampflinie aufgrund ihres stark nichtlinearen Strahlungstransfers nicht nach dem gleichen einfachen Verfahren wie beim Chlormonoxid invertieren. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher eine OEM Inversion mit dem Levenberg-Marquardt Verfahren nach Rodgers (2000) implementiert. Im Gegensatz zum Chlormonoxid Retrieval werden hierbei keine kalibrierten Spektren verwendet, da eine Umrechnung aufgrund der Höhenverteilung des Wasserdampfes mit einem ein-

fachen Zwei-Schichten Modell nicht möglich ist. Um die sich daraus ergebenden Probleme zu umgehen werden unkalibrierte Differenzspektren gemäß Gleichung (4.14) der im vorhergehenden Kapitel vorgestellten Referenzstrahl-Meßmethode verwendet. Im Inversionsprogramm werden dazu zwei Vorwärtsrechnungen für den Signal- und den Referenzstrahl durchgeführt, wobei der Strahlungstransfer durch das Laborfenster und die Plexiglas-Platte im Vorwärtsmodell nachgestellt wird. Aus den Gleichungen (4.12) und (4.13) ergibt sich das verwendete Vorwärtsmodell damit vereinfacht zu:

$$F = \frac{S - R}{R} \approx \frac{T_{\text{Antenne}}^{\text{Sig}} - T_{\text{Antenne}}^{\text{Ref}}}{T_{\text{Antenne}}^{\text{Ref}} + T_{\text{SYS}}} \quad (5.40)$$

mit

$$T_{\text{Antenne}}^{\text{Sig}} = F_{\text{Sig}} \cdot Tr_{\text{F}} + T_{\text{F}} \cdot Em_{\text{F}} \quad (5.41)$$

$$T_{\text{Antenne}}^{\text{Ref}} = F_{\text{Ref}} \cdot Tr_{\text{F}} \cdot Tr_{\text{P}} + T_{\text{F}} \cdot Em_{\text{F}} \cdot Tr_{\text{P}} + T_{\text{P}} \cdot Em_{\text{P}} \quad (5.42)$$

Dabei sind  $F_{\text{Sig}}$  und  $F_{\text{Ref}}$  die Vorwärtsspektren in Signal- und Referenzrichtung, die jeweils durch die Transmissionen von Fenster  $Tr_{\text{F}}$  oder Plexiglas  $Tr_{\text{P}}$  abgeschwächt, beziehungsweise durch einen temperaturabhängigen Emissionsbeitrag  $Em_{\text{F}} = (1 - Tr_{\text{F}})$  und  $Em_{\text{P}} = (1 - Tr_{\text{P}})$  erhöht sind. Die zugehörigen Temperaturen sind  $T_{\text{F}}$  und  $T_{\text{P}}$ .

Für die testweise durchgeführten Messungen nach dem Totalpower Verfahren in Abschnitt 8.2 wurde für die Wasserdampf Inversion zusätzlich ein entsprechendes Vorwärtsmodell implementiert. Dieses ist weniger kompliziert als bei der Referenzstrahl Methode, da lediglich ein Meßstrahl unter einem festen Totalpower-Winkel  $\theta$  betrachtet wird und keine Plexiglas Platte berücksichtigt werden muß. Es ergibt sich zu:

$$F = T_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}} = F_{\text{TP}\theta} \cdot Tr_{\text{F}} + T_{\text{F}} \cdot Em_{\text{F}} \quad (5.43)$$

$T_{\text{Antenne}}^{\text{Quelle}}$  ist das Totalpower Spektrum, das gemäß Gleichung (4.11) aus Leistungsmessungen der Atmosphäre, der warmen und der kalten Last sowie den Temperaturen der Lasten bestimmt wird.

Durch Ableitung der Gleichungen (5.40) beziehungsweise (5.43) gemäß Gleichung (5.26) erhält man die für die Inversionen benötigten Gewichtsfunktionsmatrizen.

Als Vorwärtsprogramm wird in beiden Fällen `forward` verwendet, das von Ingo Wohltmann jedoch um die speziellen Probleme des Wasserdampfes wie

insbesondere die Druckverschiebung, die Eigenverbreiterung sowie die logarithmierten Profile erweitert wurde – näheres dazu kann bei Wohltmann (2002) nachgelesen werden. Zusätzlich zu mehreren Stehwellen, einem Slope sowie einem Bias kann beim Wasserdampf Referenzstrahl-Retrieval optional auch die Transmission der Plexiglasplatte mit angepaßt werden.

## 5.7 Fazit zu diesem Kapitel

Eine der Aufgaben dieser Arbeit ist die Auswertung der 22 GHz Wasserdampf und 204 GHz Chlormonoxid Spurengasspektren, die mit dem RAM in Spitzbergen nach dem Referenzstrahl Verfahren gemessen wurden.

Für die Chlormonoxidauswertung war dieses einfach, da die Linie kaum nichtlinear ist und zudem auf eine erprobte Inversion zurückgegriffen werden konnte. Lediglich die Vorverarbeitung der Spektren konnte verbessert werden – siehe dazu auch Abschnitt 7.1.

Die Wasserdampfauswertung gestaltete sich jedoch ungleich komplizierter, da die Spurengaslinie stark nichtlinear ist. Aus diesem Grund wurde zur Auswertung eine Inversion nach Levenberg-Marquardt für die Referenzstrahl Methode implementiert. Wie in Kapitel 8 noch gezeigt wird, liefert dieses jedoch keine vertrauenswürdigen Ergebnisse. Daher wurde zusätzlich eine einfachere, auf der Totalpower Methode basierende Inversion implementiert. Die Ergebnisse dazu finden sich in Abschnitt 8.2 und sehen brauchbarer aus.

## 6 Das Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen

Nachdem es im vorhergehenden Kapitel um die mehr theoretische Seite der Mikrowellenradiometrie ging, wird in diesem Kapitel die technische Realisierung des verwendeten »Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen« – im Folgenden mit RAM abgekürzt – vorgestellt. Das RAM besteht aus drei einzelnen Radiometern mit denen die Rotationslinien von Wasserdampf bei 22, Ozon bei 142 und Chlormonoxid bei 204 GHz beobachtet werden. Im Rahmen dieser Arbeit geht es nur um den Wasserdampf- und den Chlormonoxidteil des Radiometers, sowie die gemeinsam genutzten Komponenten mit einem besonderem Augenmerk auf die in den Jahren 1999 bis 2001 zur Verbesserung der Signalqualität durchgeführten technischen Veränderungen. Das im August 2000 im Rahmen dieser Dissertation neu eingeführte Steuerprogramm MCP soll an dieser Stelle nur kurz angesprochen werden. Eine Auflistung der wichtigsten technischen Daten der Meßgeräte finden sich in Anhang D.

### 6.1 Backend

Als Radiometer ist das RAM in drei verschiedene »Frontends«, die speziell für die beobachteten Spurenstoffe angepaßt sind sowie ein gemeinsam genutztes »Backend« unterteilt<sup>1</sup>. Das Backend ist in Abbildung 6.1 schematisch dargestellt. Über einen Mikrowellenschalter wird eines der Frontends ausgewählt. Das Liniensignal hat am Eingang des Backends eine Zwischenfrequenz von 8 GHz und wird in der Zwischenfrequenz Kette mittels eines 5,9 GHz Lokaloszillators auf die 2,1 GHz Eingangsfrequenz des Spektrometers herunterge-

---

<sup>1</sup> Üblich ist in der Mikrowellenradiometrie auch eine Unterteilung, bei der das Backend der Geräteteil nach dem ersten (rauscharmen) Verstärker ist.

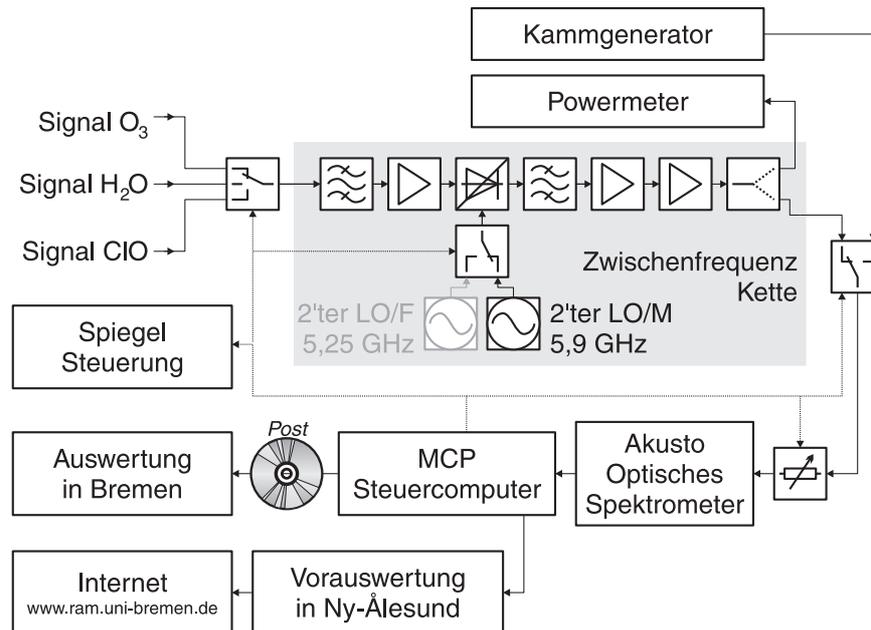


Abbildung 6.1: Eine schematische Darstellung des von den drei Frontends des RAM verwendeten Backends. Das Signal der Radiometer wird in der Zwischenfrequenz Kette von 8 auf 2,1 GHz umgesetzt. Ein Steuercomputer schaltet die verschiedenen Mikrowellenschalter, stellt die Drehspiegel der Radiometer und speichert die vom Spektrometer aufgenommenen Meßdaten.

mischt; zudem findet in ihr eine Verstärkung um etwa 95 dB sowie eine Eingrenzung der Bandbreite auf 1 GHz statt. Der zusätzlich vorhandene 5,25 GHz Lokaloszillator wird nur für die Messung der Flanke der Ozonlinie verwendet. Ein geringer Anteil der Ausgangsleistung der Zwischenfrequenz Kette wird über einen Leistungsteiler ausgekoppelt und auf ein Powermeter gegeben, das zur direkten Kontrolle der Systemeigenschaften verwendet wird. Der Hauptteil der Leistung geht in das als Detektor verwendete akustooptische Spektrometer. Ein schaltbarer Abschwächer wird zur Anpassung der Ausgangsleistung an den Aussteuerungsbereich des Spektrometers eingesetzt. Neben dem Meßsignal kann auch ein Kammgenerator auf das Spektrometer geschaltet werden; er erzeugt schmale Signalspitzen in einem Abstand von 100 MHz an fest vorgegebenen Frequenzen. Da das Spektrometer einer geringen zeitlichen Frequenzdrift unterworfen ist kann mit dem Kammgenerator eine genaue Zuordnung der Frequenzen zu den Spektrometerkanäle – eine sogenannte Frequenzzeichnung – durchgeführt werden.

## 6.2 Chlormonoxid Frontend

Aufbauend auf dem Basisdesign eines breitbandigen Radiometers zum Empfang von Spurengaslinien zwischen 100 und 300 GHz von Ulf Klein (1993) ist das Chlormonoxid Frontend von Gerhard Schwaab und Uwe Raffalski (1997) für die Beobachtung der Spurengaslinie bei 204,3519 GHz optimiert worden. Das Meßgerät befindet sich seit dem Winter 1993/1994 in Ny-Ålesund, auf Spitzbergen.

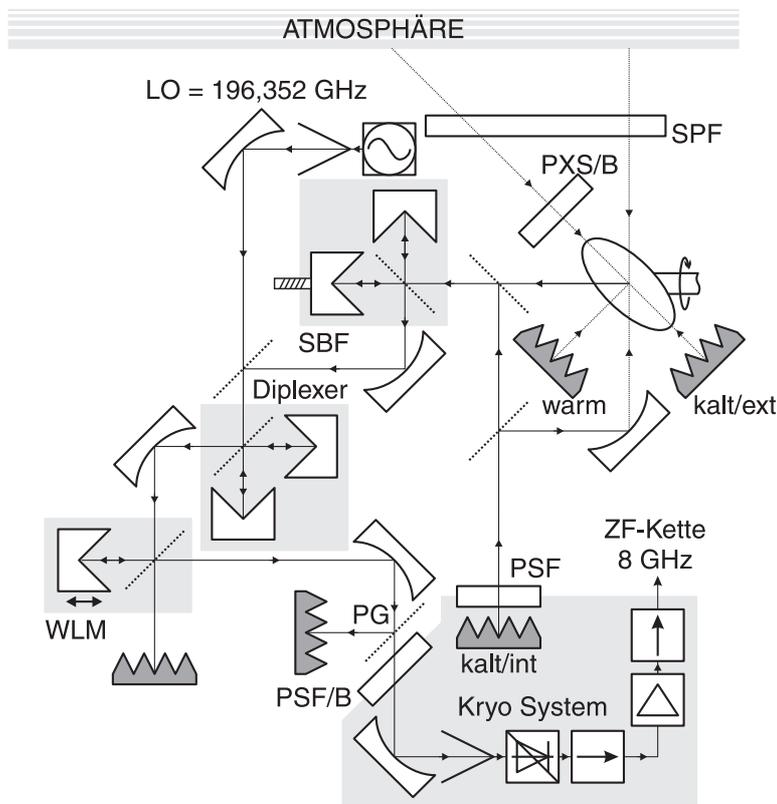


Abbildung 6.2: Eine schematische Darstellung des Chlormonoxidradiometers auf dem aktuellen Stand des Jahres 2001. SPF bezeichnet das Styroporfenster, PXS/B bezeichnet eine Plexiglasplatte die sich unter dem Brewsterwinkel im Referenzstrahl befindet, WLM bezeichnet den Weglängenmodulator und SBF das als Seitenbandfilter verwendete Martin-Puplett-Interferometer. Mit PSF sind die als Ersatz für die Mylarfenster im Januar 1999 eingebauten Polystyrolfenster, wobei das Fenster PSF/B zusätzlich unter dem Brewsterwinkel im Strahlengang steht. Der Polarisationsgitter PG wurde im Januar 2000 zusätzlich eingebaut.

In Abbildung 6.2 ist das Chlormonoxid Frontend auf dem gegenwärtigen technischen Stand des Jahres 2001 schematisch dargestellt.

Ein computergesteuerter drehbarer Spiegel ermöglicht den Blick auf verschiedene Referenzlasten: Mikrowellen Absorbermaterial bei Raumtemperatur als warme Last, eine interne kalte Last bei etwa 60 K sowie eine externe kalte Last in Form eines Behälters mit flüssigem Stickstoff bei etwa 77 K. Die Temperaturen der warmen sowie der internen kalten Last werden als Teil der »Housekeeping« Daten aufgezeichnet und in der Auswertung verwendet. Der Spiegel kann unter einem festen Referenzwinkel von  $60^\circ$  in die Atmosphäre weisen, wobei sich in der Sichtlinie eine zur Vermeidung von Reflektionen und damit Stehwellen unter dem Brewster-Winkel angebrachte Plexiglasplatte (PXS/B) befindet, die für die in Abschnitt 4.5 beschriebene Referenzstrahl Methode benötigt wird. Schließlich kann der Spiegel auch unter einem variablen Signalwinkel von  $10$  bis  $20^\circ$  ohne Plexiglasplatte in die Atmosphäre blicken. Das Laborfenster (SPF) besteht aus Styropor und ist für die beobachtete Frequenz hinreichend transparent.

Das atmosphärische Signal mit der Frequenz 204 GHz entspricht in etwa einer Wellenlänge von 1,5 mm; neben Wellenleitern kann in diesem Frequenzbereich auch die gaußsche Quasioptik mit Spiegeln zur Signalführung verwendet werden. Bei der Quasioptik des RAM gelangt das Signal in ein erstes Martin-Puplett Interferometer, das als Einseitenbandfilter fungiert. Mit einem nachfolgenden zweiten Martin-Puplett Interferometer wird das zum Mischen benötigte Lokaloszillatorsignal in den Strahlengang eingekoppelt. Ein Dachkantspiegel mit Polarisationsgitter fungiert als Weglängenmodulator mit dem in der Quasioptik entstandene Stehwellen ausgemittelt werden sollen. Über ein im Brewsterwinkel angebrachtes Polystyrolfenster (PSF/B) gelangt das Signal schließlich in das Vakuumgehäuse und über einen fokussierenden Spiegel in die Hornantenne des Mixers. Zur Quasioptik und der genauen Funktionsweise der Martin-Puplett Interferometers als Seitenbandfilter und Diplexer sowie des Weglängenmodulators sei an dieser Stelle auf Goldsmith (1997) sowie die anderen Arbeiten der RAM Gruppe verwiesen.

Der Mischer des Chlormonoxidradiometers ist eine Schottky-Diode, die mit einer wenige Mikrometer dünnen, aus Wolfram bestehenden Langdrahtantenne (dem »Whisker«) kontaktiert ist. Der mehrere Millimeter lange Draht wurde elektrochemisch angespitzt und kontaktiert eine von zahlreichen Dioden auf einem Chip von etwa einem Quadratmillimeter Fläche. Ein großes technisches

Problem ist die hohe Anfälligkeit der Diode gegenüber elektrostatischen Entladungen, die im einfachstem Fall zu einer merklichen Verschlechterung der Mischereigenschaften, üblicherweise aber auch gleich zur Zerstörung der Diode führen können. Bei der Inbetriebnahme des Radiometers Anfang 2000 war der bisherige Mischerkontakt zerstört; der neu kontaktierte Mischer besaß eine merklich bessere Leistung, die sich in einer Systemrauschtemperatur  $P_{SYS}$  von 800 K gegenüber etwa 1.100 K vorher (Einseitenband-Betrieb) ausdrückte. Beim Chlormonoxid Radiometer muß der Mischer für einen optimalen rauscharmen Betrieb auf etwa 15 K abgekühlt werden.

Das für den heterodynen Mischprozess benötigte Lokaloszillator-Signal wird von einem mittels einer PLL (kurz für »phase locked loop«) phasengeregelten Gunn-Oszillator mit nachgeschaltetem Verdoppler erzeugt und quasioptisch durch ein Martin-Puplett Interferometers in den Signalpfad eingekoppelt.

Wie in Abschnitt 4.2 gezeigt tragen die ersten Komponenten nach dem Mischer ganz besonders zum Rauschen des Systems bei. Aus diesem Grund wird für den ersten Verstärker kein Standard FET Verstärker (FET für »Feldeffekt-Transistor«) wie in der nachgeschalteten ZF-Kette verwendet, sondern ein rauscharmer HEMT Verstärker (HEMT für »High-Electron-Mobility-Transistor«). Im gekühlten Betrieb bei etwa 15 K ist sein Rauschen um den Faktor drei geringer als der eines ungekühlten Standardverstärkers. Zur Verhinderung von Mehrfachreflektionen und damit Stehwellen befinden sich vor und nach dem Verstärker Isolatoren die das Signal nur in eine Richtung passieren lassen.

Die Kühlung von Mischer und HEMT Verstärker findet in einem evakuierten Druckgefäß statt. Zu diesem Zweck sind sie auf dem Kühkopf einer zweistufigen Kühlmaschine mit geschlossenem Helium-Kreislauf montiert und zudem durch einen Strahlungsschild gegenüber den Druckgefäßwänden abgeschirmt.

Zur Verbesserung der Signalqualität wurden im Rahmen dieser Arbeit am Chlormonoxid Radiometer folgende technische Änderungen durchgeführt:

- ▷ Zur Meßsaison 1999 wurden die Fenster des Druckgehäuses ersetzt. Bis zu diesem Zeitpunkt bestanden sie aus einer dünnen Folie aus Mylar. Dieses ist zwar für die beobachtete Frequenz transparent, das Vakuum im Druckgehäuse führte jedoch zu einer Einbeulung der Folie und damit zu möglichen Mehrfachreflektionen und Stehwellen. Zwei neu konstruierte Fenster aus Polystyrol ersetzten die alten Fenster. Das Signalfenster (PSF/B) wurde

Tabelle 6.1: Im Chlormonoxid Vorwärtsprogramm angepaßte Stehwellen der Jahre 1997 bis 2001. Die Spalte mit den Perioden bezieht sich auf die 1 GHz Bandbreite des Spektrometers (Frequenz = 1 GHz / Perioden), die Resonatorlänge ergibt sich gemäß Gleichung (4.7). Die Messungen aus dem Jahr 2001 reichen bisher nicht aus um eine Aussage über die dafür gültigen Werte der Stehwellen zu machen.

Jahr	Anzahl	Perioden	Resonatorlänge [mm]
1997	4	2 – 3 – 7,1 – 7,5	75 – 50 – 21,1 – 20
1998	2	6,4 – 6,5	23,4 – 23,0
1999	3	2,9 – 5 – 7	51,7 – 30 – 21,4
2000	1	5	30
2001	1	Noch nicht verfügbar	NNV

zur Vermeidung von Stehwellen unter dem Brewsterwinkel<sup>2</sup> in den Signalpfad eingebaut.

- ▷ Zur Meßsaison 2000 wurde das Polarisationsgitter (PG) zusätzlich in das System eingebaut. Gemäß seiner Spezifikation sollte die Empfängerkombination aus Hornantenne und Schottky-Mischer nur in einer Polarisationsrichtung empfindlich sein. Es zeigte sich jedoch, daß der Empfänger empfindlich gegenüber Kreuzpolarisationseffekten<sup>3</sup> ist, die durch dieses Gitter minimiert werden konnten.
- ▷ Im Spätsommer 2000, zur Meßsaison 2001 fand ein größerer Umbau des Radiometers statt. Bis zu diesem Zeitpunkt befand sich der Weglängenmodulator zwischen Seitenbandfilter und Diplexer – durch diese Konstruktion wurden zwar alle Stehwellen zwischen Styroporfenster und dem Weglängenmodulator minimiert, nicht jedoch diejenigen die sich zwischen Diplexer oder Lokalszillator und dem Mischer ausbilden können. Wie in Abbildung 6.2 erkennbar befindet sich der Weglängenmodulator jetzt zwischen Diplexer und Mischer. In dieser Anordnung befinden sich nur noch zwei Spiegel, das Vakuumfenster sowie das Polarisationsfilter (PG) ohne Weglängenmodulation vor dem Mischer.

Die Identifizierung von Stehwellen in den verrauschten Spektren ist eine schwierige Aufgabe die ein gutes Auge und viel Erfahrung bedarf (respektive

<sup>2</sup> Der Brewsterwinkel für Polystyrol ist der gleiche wie bei Plexiglas und beträgt etwa 58°

<sup>3</sup> Man spricht von Kreuzpolarisation, wenn ein Bauteil welches in nur einer Polarisationsrichtung eine Empfindlichkeit besitzen sollte auch in der 90° dazu verkippten »Kreuzrichtung« sensitiv ist.

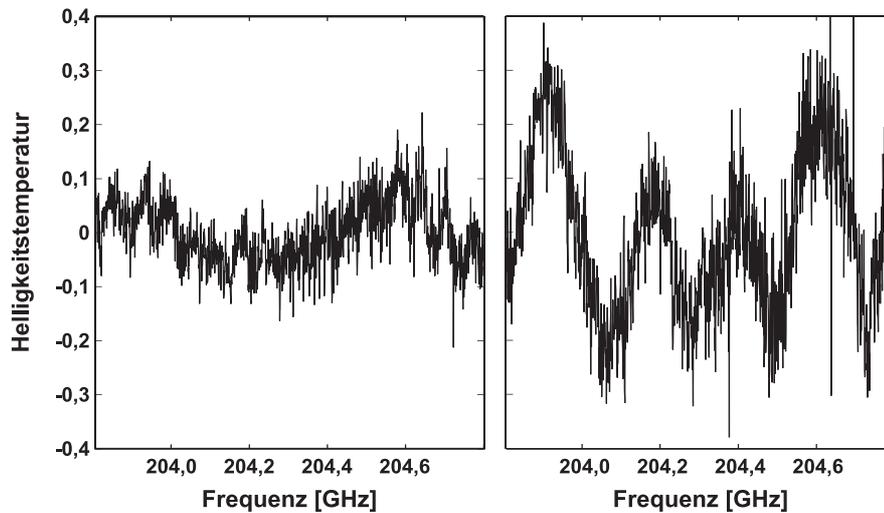


Abbildung 6.3: Links die Baseline des Chlormonoxidradiometers für das Jahr 2001 nach dem größeren Umbau des Weglängenmodulators im Spätsommer 2000. Dazu im Vergleich rechts die Baseline aus dem Jahre 2000, die schon eine Verbesserung gegenüber den Vorjahren bedeutete (Daten vom 1. März 2000). Die Baseline ist dabei um Faktor drei kleiner als zuvor und befindet sich jetzt im Bereich der typischen Chlormonoxid Signalstärke von etwa 50 mK. Es handelt sich jeweils um Nachtmessungen bei der keine ausgeprägte Chlormonoxid Linie zu erwarten ist. Die Integrationszeit beträgt jeweils nur etwa 10 Minuten (Daten vom 7. Februar 2001).

langwieriges ausprobieren). Anhand der Resonatorlänge läßt sich gegebenenfalls die verursachende Wegstrecke identifizieren und die Stehwelle dort entfernen. Zur Abschätzung der Wirkung eines Geräteumbaus kann die Anzahl der Stehwellen herangezogen werden, die im Retrieval an die Vorwärtsspektren angepaßt werden müssen um das gemessene Spektrum nachzubilden<sup>4</sup>. Tabelle 6.1 faßt die zugehörigen Ergebnisse für die Jahre 1997 bis 2001 zusammengefaßt.

In Abbildung 6.3 ist die Veränderung der Baseline aufgrund der letzten Umbauten im Spätsommer 2001 im Vergleich zum Vorjahr abgebildet. Es zeigt sich, daß durch die Veränderung des Weglängenmodulators die Baseline deutlich verbessert werden konnte. Sie ist um einen Faktor drei kleiner als zuvor und befindet sich jetzt im gleichen Größenbereich wie die Chlormonoxidlinie die eine typische Signalstärke von etwa 50 mK besitzt. Eine genaue Beurteilung

<sup>4</sup> Diese Aussage ist allerdings nur begrenzt richtig, denn die Anpassung mehrerer perfekt sinusförmiger Stehwellen ist der Anpassung einer einzelnen unharmonischen Stehwelle vorzuziehen.

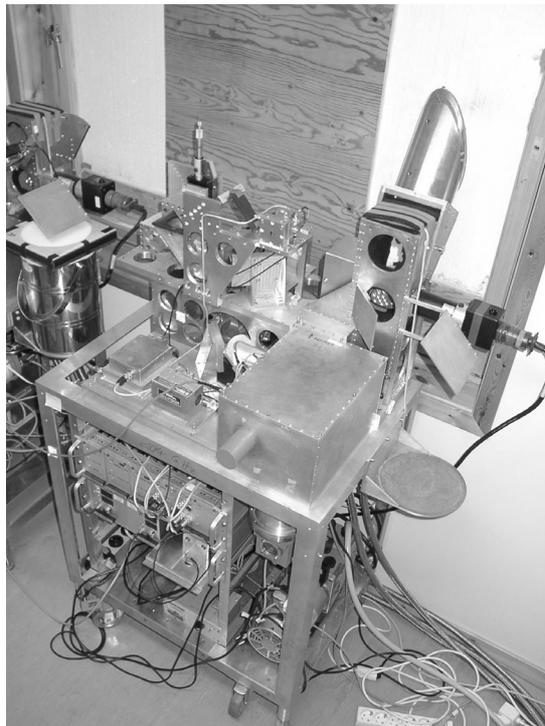


Abbildung 6.4: Das Chlormonoxid Radiometer im NDSC Observatorium in Ny-Ålesund. Auf der Grundplatte befindet sich die Quasioptik aus Spiegeln, Polarisationsgittern und Interferometern; links erkennt man die Mikrometerschraube zur Anpassung des Seitenbandfilters, in der Mitte befindet sich der Lokaloszillator und rechts im Turm der drehbare Spiegel. Der rechteckige Block vorne-rechts ist das Druckgehäuse mit Mischer und Verstärker, darunter befindet sich die Kühlpumpe. Im Rack unterhalb der Grundplatte sind die Versorgungs-, Steuer- und Schalteinrichtungen des Radiometers untergebracht. Die Zwischenfrequenzkette mit dem Spektrometer befindet sich im linken, benachbarten Rack des Ozon Radiometers.

der Stehwellen kann hingegen erst nach einer ausführlichen Winter Meßsaison durchgeführt werden. Aufgrund anfänglicher technischer Probleme und dem sehr frühen Zusammenbrechen des Polarwirbels Mitte Februar 2001 konnte diese bisher noch nicht durchgeführt werden.

Abschließend zeigt Abbildung 6.4 das Chlormonoxid Radiometer, wie es im NDSC Observatorium in Ny-Ålesund installiert ist. Informationen zu den technischen Daten des Chlormonoxid Radiometers finden sich in Anhang D.

## 6.3 Wasserdampf Frontend

Im Winter 1999 wurde das 22 GHz Wasserdampfradiometer im NDSC Observatorium in Ny-Ålesund in Betrieb genommen. Im Gegensatz zu den beiden anderen Frontends des RAM ist die Quasioptik nur für den Empfang einer einzigen Frequenz vorgesehen, was ein stark vereinfachtes Design ermöglichte. Dieses ist auch notwendig, denn die Wellenlänge von 13,5 mm bedingt Spiegel, die in einer Größenordnung von einem halben Meter liegen. Zudem sind im 22 GHz Frequenzbereich zahlreiche kommerzielle Komponenten aus der Radartechnik verfügbar, so daß eine Seitenbandfilterung nicht quasioptisch vorgenommen werden muß.

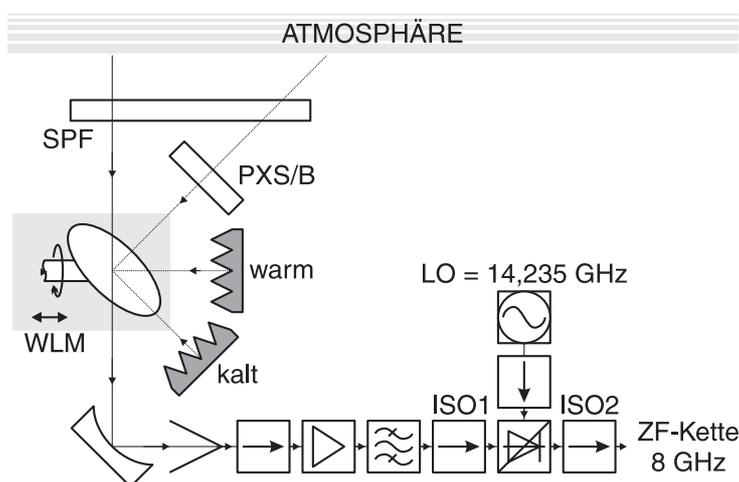


Abbildung 6.5: Eine schematische Darstellung des Wasserdampfradiometers auf dem aktuellen Stand des Jahres 2001. SPF bezeichnet das Styroporfenster, PXS/B bezeichnet eine Plexiglasplatte die sich unter dem Brewsterwinkel im Referenzstrahl befindet. WLM bezeichnet den Weglängenmodulator, auf dem der drehbare Spiegel montiert ist. ISO1 ist der im Frühjahr und ISO2 der im Sommer 1999 nachträglich eingebaute Isolator.

In Abbildung 6.5 ist das Wasserdampf Frontend auf dem gegenwärtigen technischen Stand des Jahres 2001 schematisch dargestellt. Das atmosphärische Signal gelangt wie beim Chlormonoxidradiometer durch ein im Mikrowellenbereich transparentes Styroporfenster auf einen computergesteuerten drehbaren Spiegel. Der Blick in die Atmosphäre kann auf zwei Pfaden erfolgen: Durch eine unter dem Brewster-Winkel im Strahlengang stehende Platte aus Plexiglas

bei  $65^\circ$  oder unter einem Signalwinkel der sich zwischen minimal  $15^\circ$  und maximal  $30^\circ$  liegen darf. Aufgrund der großen Strahldivergenz kann beim Wasserdampf Radiometer durch die ebenen Plexiglasplatten nur für die Strahlmitte der Brewster Winkel von  $58^\circ$  gewährleistet werden. Bei einer Strahlaufweitung von etwa  $6^\circ$  im Fernfeld bedeutet dieses, daß der äußere Strahl das Plexiglas unter  $63^\circ$  beziehungsweise  $55^\circ$  auf die Platte trifft, was zu ungewollten Stehwellen führen kann. Wie weiter unten noch ausgeführt, konnten jedoch keine der beobachteten Stehwellen auf die Plexiglas Platte zurückgeführt werden.

Neben der Atmosphäre kann der Spiegel auch auf zwei Referenzlasten zeigen: Mikrowellen Absorbermaterial bei Raumtemperatur als warme Last und ein für die Kalibration zeitweilig im Gerät stehender Behälter mit flüssigem Stickstoff bei etwa 77 K. Zur Minimierung von quasioptischen Stehwellen befindet sich der Drehspiegel auf einem motorgetriebenen Verschiebetisch, der als Weglängenmodulator fungiert.

Die einfach aufgebaute Quasioptik des Radiometers besteht nur aus dem rotierenden Spiegel sowie einem großen fokussierenden Ellipsoidspiegel, der den Öffnungswinkel der Hornantenne von etwa  $11^\circ$  auf  $6^\circ$  verringert<sup>5</sup>. Bei der großen Wellenlänge des Radiometers zeigen die gaußschen Strahlen eine sehr große Divergenz (Goldsmith (1997)). Ohne die vorgenommene Fokussierung hätte der Strahl am Fenster einen Durchmesser von weit über einen Meter und eine Signalführung ohne Reflektionen an Fensterrahmen und der Plexiglasplattenhalterung wäre kaum möglich. Zudem kann durch die Fokussierung der rotierbare Spiegel klein gehalten werden, was sich in geringeren Stellzeiten niederschlägt. Die meisten anderen 22 GHz Radiometer verzichten auf einen fokussierenden Spiegel. Bei diesen Geräten verwendet man entweder andere Empfangshornkonstruktionen mit geringerer Strahlaufweitung oder versucht die Entfernung zwischen Horn und Drehspiegel möglichst klein zu halten; als Folge müssen sich einzelne Komponenten wie der Fangspiegel oder sogar die ganzen Radiometer außerhalb der Laboratorien befinden (siehe dazu auch die technischen Beschreibungen der verschiedensten 22 GHz Radiometer, zum Beispiel bei Urban et al. (2001), Lindner et al. (1999), Seele und Hartogh (1999) oder Nedoluha et al. (1995)).

Im Gegensatz zum Chlormonoxid Radiometer befindet sich direkt hinter der Hornantenne nicht der Mischer, sondern nach einem Wellenleiterisolator folgt

---

<sup>5</sup> Der Öffnungswinkel bezieht sich auf den sogenannten FWHM Wert (steht für »Full Width at Half Maximum«) bei dem die Signalintensität um 3 dB abgesunken ist.

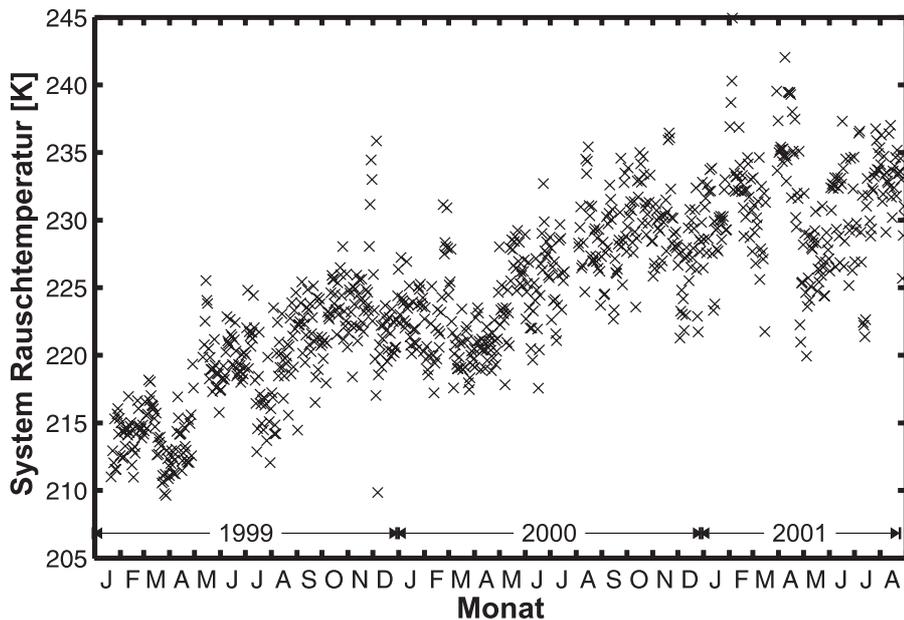


Abbildung 6.6: Die Systemrauschtemperatur des Wasserdampf Radiometers von Anfang 1999 bis Sommer 2001 aus Daten der täglichen Systemkalibration. Kleinere Sprünge beruhen auf technischen Änderungen am Gerät. Der allgemeine Trend zeigt einen linearen Anstieg.

als erste Komponente ein rauscharmer Verstärker, mit dem das Signal schon bei 22 GHz um 40 dB verstärkt wird. Nach einem Bandpassfilter sowie einem Isolator zur Minimierung von Stehwellen wird das Signal schließlich mittels eines Schottky Mischers auf die 8 GHz Eingangsfrequenz der Zwischenfrequenz Kette heruntergemischt. Ein weiterer Isolator verbessert die Anpassung von Frontend zum Backend.

Seit Anfang 1999 verschlechterte sich die Systemrauschtemperatur des Wasserdampf Radiometers weitestgehend linear von unter 220 K auf etwas über 230 K im Sommer 2001 – siehe dazu Abbildung 6.6. Sprünge in der Kurve, wie zum Beispiel im Mai 1999, gehen auf technische Änderungen zurück. Die täglichen Schwankungen beruhen zum Teil auf der falsch vorausgesetzten Temperatur der kalten Last. Durch Verunreinigung mit Sauerstoff liegt sie deutlich über den zur Berechnung angenommenen 77 K – siehe dazu auch Abschnitt 7.3. Ob der Anstieg auf die Alterung des Mischers, des Verstärkers oder auf andere Bauteile zurückzuführen ist, läßt sich ohne einen Austausch von Komponenten nicht feststellen.

Zur Verbesserung der Signalqualität wurden im Rahmen dieser Arbeit am Wasserdampf Radiometer folgende technische Änderungen durchgeführt:

- ▷ Im Frühjahr 1999 wurde zur Verminderung von Stehwellen ein zusätzlicher 22 GHz Isolator (ISO1) in den Signalpfad zwischen rauscharmen Verstärker und Seitenbandfilter eingebaut. Testweise befand sich der Isolator auch für einige Zeit zwischen Seitenbandfilter und Mischer.
- ▷ Im Sommer 1999 wurde ein zusätzlicher Isolator (ISO2) in den Signalpfad zwischen Radiometerfrontend und -backend installiert.

Der Einbau des Isolators (ISO1) bewirkte keine nennenswerten Veränderungen am Verhalten des Frontends – auch der Versuch diesen Isolator an einer anderen Stellen im Radiometer zu verwenden blieb erfolglos. Erst durch den Einbau des zweiten Isolators (ISO2) konnte eine Stehwelle beseitigt werden, die sich jedoch in Signal- und Referenzpfad gleichermaßen stark auswirkte und daher bei der Bildung des Differenzspektrums herausfiel. Jedoch konnte dadurch die Baseline dermaßen verbessert werden, daß mit dem Radiometer auch Messungen nach der Totalopwer Methode möglich wurden (siehe dazu auch den Abschnitt 8.2). Alle weiteren Versuche und Änderungen führten zu keiner Verbesserung des Spektrums, so daß gegenwärtig wie in Tabelle 6.2 aufgelistet noch immer mindestens zwei Stehwellen im Vorwärtsprogramm angepaßt werden müssen.

Tabelle 6.2: Im Wasserdampf Vorwärtsprogramm angepaßte Stehwellen. Die Spalte mit den Perioden bezieht sich auf die 1 GHz Bandbreite des Spektrometers (Frequenz = 1 GHz / Perioden), die Resonatorlänge ergibt sich gemäß Gleichung (4.7).

Jahr	Anzahl	Perioden	Resonatorlänge [mm]
1999–2001	2	0,1 – 0,58	1.500 – 258

In Abbildung 6.7 sind Spektrum (schwarz) und Vorwärtsspektrum (grau) sowie die zugehörigen Residuen (Spektrum Minus Vorwärtsspektrum) für eine Messung dargestellt, jeweils ohne und mit einer Stehwellenanpassung durch das Vorwärtsmodell (angepaßt wurden die drei Stehwellen aus Tabelle 6.2). Das Vorwärtsmodell ist in der Lage die Phase und Amplitude der vorgegebenen Stehwellen so anzupassen, daß das Residuum minimal wird. Ohne die vorgenommene Stehwellenanpassung (Abbildung oben) liegt das Residuum im gleichen Größenbereich wie die Signalstärke der zentralen Wasserdampf-Linie

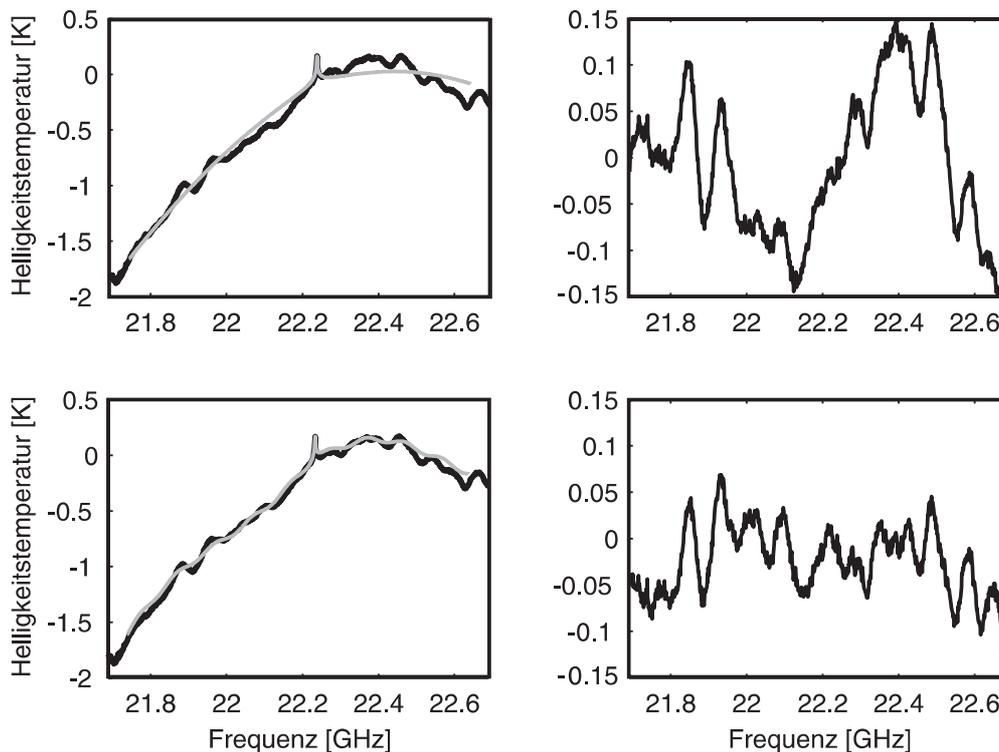


Abbildung 6.7: Oben: Links das Spektrum und Vorwärtsspektrum (grau) einer Wasserdampfmessung ohne angepaßte Stehwellen; Rechts das Residuum bestehend aus Spektrum abzüglich dem Vorwärtsspektrum. Die Effekte der Stehwellen liegen in der gleichen Größenordnung wie die Stärke der zentralen Wasserdampflinie von etwa 0,15 K. Unten: Links Spektrum und Vorwärtsspektrum (grau) mit den zwei angepaßten Stehwellen, Rechts das zugehörige Residuum. Es zeigt sich, daß trotz der Anpassung noch immer deutlich Stehweleneffekte erkennbar sind; im Gegensatz zu oben-rechts sind sie jetzt jedoch nicht mehr in der Größenordnung der beobachteten Wasserdampflinie (Daten vom 25. November 1999).

von etwa 150 mK; die Stehwelle mit der Periode 0,58 GHz läßt sich deutlich identifizieren. Trotz der angepaßten Stehwellen befindet sich auf dem Residuum (Abbildung unten) noch eine deutlich erkennbare Stehwelle, deren Periode jedoch über die Frequenz nicht konstant ist; die Resonatorlänge liegt in einem Bereich zwischen 1500 und 2000 mm.

Die große Resonatorlänge der nicht anpaßbaren Stehwelle deutet erst einmal auf Effekte in der Quasioptik. Insbesondere die Plexiglasplatten bieten sich als Verursacher an, da sie aufgrund der großen Strahlaufweitung nur für den mittleren Referenzstrahl unter dem Brewster Winkel vom Meßgerät gesehen werden.

Problematischerweise läßt sich aber ohne die Plexiglasplatten keine Messung der Stehwellen durchführen; eine Variation ihres Winkels zum Strahl verursachte jedoch keine meßbaren Änderung der Stehwelle. Da sie auch bei den testweise nach dem Totalpower Verfahren vorgenommenen Messungen (siehe dazu den Abschnitt 8.2) noch erkennbar ist, läßt sich das Plexiglas als Ursache wohl ausschließen. Durch weitere Untersuchungen konnte auch das Fenstertypopor als Ursache eliminiert werden. Es erwies sich als transparent, und nur bei Feuchtigkeit sowie Eis- und Schneebedeckung ändert es seine Mikrowelleneigenschaften geringfügig ohne jedoch Einfluß auf die Stehwellen zu nehmen. Ebenso konnten Kreuzpolarisationseffekte, wie sie beim Chlormonoxid Radiometer auftraten ausgeschlossen werden; weder durch die Verwendung eines als Polarisator dienenden langen Wellenleiters zwischen Hornantenne und Wellenleiterisolator noch durch den Einsatz eines Gitters in der Quasioptik konnte die Stehwelle merklich beeinflußt werden. Versuche die Stehwelle im elektronischen Teil des Radiometers zu identifizieren waren ebenso erfolglos. Der Austausch der Kabel durch die das Wasserdampfradiometer mit dem Backend verbunden ist und dessen Länge im Bereich der Stehwelle liegt brachte keine Verbesserung. Der testweise Austausch von aktiven Komponenten wie Mischer oder Verstärker war nicht möglich, da keine dazu notwendigen Bauteile vorhanden waren. Abschnitt 8.3 beschäftigt sich noch etwas ausführlicher mit den Eigenschaften dieser Stehwelle.

Bei der 0,58 GHz Stehwelle kann aufgrund der großen quasioptischen Weglängen nur die Hornantenne mit ihrer Länge von 234 mm als Verursacher in Frage kommen. Als unverzichtbare Komponente, für die es kein Austauschteil gibt, kann sie jedoch nicht überprüft werden. Versuche die Stehwelle im elektronischen Teil des Meßgerätes zu identifizieren blieben ebenfalls erfolglos. Weder der oben schon beschriebene Einbau von Isolatoren, noch die Verwendung anderer Kabel oder eine Anpassung der Impedanzen einzelner Komponenten führte zu Verbesserungen. Aufgrund der unsymmetrischen Form der 22 GHz Wasserdampflinie hat diese Stehwelle jedoch einen verhängnisvollen Einfluß auf die Auswertung. Da sie in etwa die halbe Bandbreite des AOS abdeckt, kann sie bei einer schlechten Anpassung im Vorwärtsmodell die Auswertung unmöglich machen.

Ein kleineres Problem ergab sich bei den Wasserdampfmessungen durch den Kammgenerator. Er läuft ununterbrochen und wird bei Bedarf mittels eines HF-Schalters auf das Spektrometer geschaltet – siehe dazu auch Abbildung

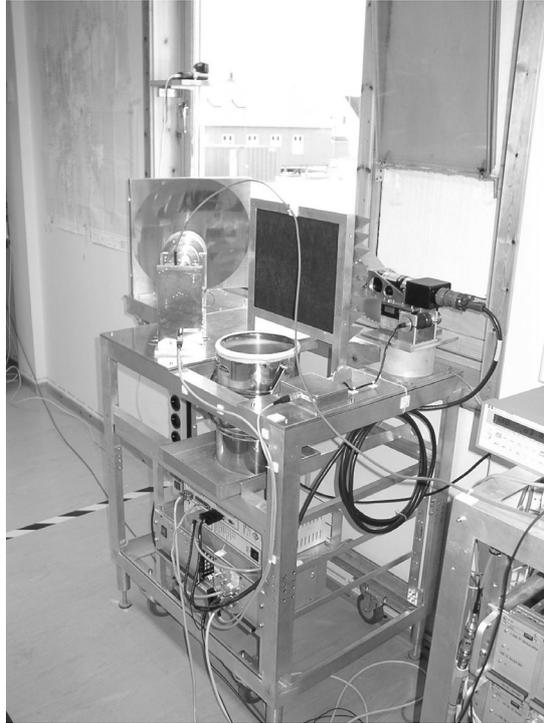


Abbildung 6.8: Das Wasserdampf Radiometer im NDSC Observatorium in Ny-Ålesund. Über das Empfangshorn mit der Frontendelektronik hinweg blickt man direkt in den großen elliptischen Fokussierspiegel. Auf der Grundplatte rechts, auf einem Absatz befindet sich der Weglängenmodulator mit dem Motor für den Drehspiegel, der bei dieser Perspektive durch die warme Last verdeckt ist. Der im Bild erkennbare Behälter mit dem Stickstoff wird zur Kalibration unter den Drehspiegel geschoben. Im oberen Bereich des Styroporfensters erkennt man die für Referenzstrahlungsmessungen benötigte Plexiglasplatte. Im Rack unterhalb der Grundplatte sind die Versorgungs-, Steuer- und Schalteinrichtungen des Radiometers untergebracht. Die Zwischenfrequenzkette mit dem Spektrometer befindet sich im rechts benachbarten Rack des Ozon Radiometers.

6.1. Bei einer üblichen Kammgeneratormessung sind die alle 100 MHz auftretenden Signalspitzen im Meßspektrum deutlich zu erkennen – siehe dazu beispielsweise B.2. Jedoch zeigen sich zeitweilig auch deutliche Signalspitzen in den erzeugten Wasserdampf Differenzspektren – die zugrundeliegenden Originalspektren waren dabei frei von sichtbaren Effekten des Kammgenerators. Die Störungen treten bei etwa 25% aller Messungen, jeweils zeitlich gehäuft auf. Weder bei den Chlormonoxid Spektren, noch bei den Ozon Spektren konnte der Effekt beobachtet werden. Eine Verbindung zu anderen Eigenschaf-

ten oder Einstellungen des Meßgerätes konnten nicht ausgemacht werden, so daß die Ursache bis auf weiteres unbekannt bleibt.

Um den Effekt aufzuheben oder zumindest zu vermindern wurden Teile der Wasserdampfelektronik (in die das Signal wahrscheinlich eingestrahlt wird) sowie der Kammgenerator (der das Signal wahrscheinlich ausstrahlt) im Winter 2000 hermetisch in Metallkisten eingeschlossen. Es zeigten sich jedoch nicht die geringsten Änderungen, so daß die Signalspitzen bei der Auswertung aus den Spektren entfernt werden müssen. Dieses ist nicht weiter problematisch, da sie sich in einem ausreichend Abstand zur Linienmitte befinden und zudem hinreichend schmal sind.

Abschließend zeigt Abbildung 6.8 das Wasserdampf Radiometer, wie es im NDSC Observatorium in Ny-Ålesund installiert ist. Informationen zu den technischen Daten des Meßgerätes sowie Angaben zu den verwendeten Komponenten sowie den Weglängen der Quasioptik finden sich in Anhang D.

## 6.4 Anpassung der Plexiglasplatten

Wie in Abschnitt 4.5 beschrieben benötigt man für die Referenzstrahl Methode eine Plexiglasplatte, die sich im Referenzstrahl befinden muß und die geringere Intensität des atmosphärischen Signales breitbandig erhöht. Die genaue Intensität des Signalstrahles wird durch Variation des Elevationswinkels an die Intensität des Referenzstrahles angepaßt. Veränderungen der atmosphärischen Opazität haben aufgrund des längeren Weges durch die Atmosphäre größere Auswirkungen auf die Intensität des Signalstrahles als auf die des Referenzstrahles. Der Winkelbereich für den Signalstrahl reicht damit üblicherweise nicht aus, um größere Veränderungen des Wetters auszugleichen.

Beim Chlormonoxidradiometer ist dieses wegen des ohnehin sehr eng begrenzten Witterungsfensters bei dem gemessen werden kann nicht von Bedeutung, so daß eine einzige Plexiglasplatte mit einer Dicke von 6mm für den Meßbetrieb ausreicht. Sofern die Atmosphäre dichter wird, würde eine dickere Ausgleichsplatte notwendig, doch in diesem Fall ließe sich die schwache Chlormonoxid Linie ohnehin nicht mehr messen. Lediglich zum »erzwingen« von Messungen bei schlechtem Wetter existiert im Labor ein Satz von dickeren Plexiglasplatten.

Das Wasserdampfradiometer soll jedoch das ganze Jahr über messen. Das bedeutet, daß es sowohl im trockenen kalten Winter mit geringer als auch im regnerisch feuchten Sommer mit hoher atmosphärischer Opazität einen Ausgleich zwischen Referenz- und Signalstrahl durchführen muß. Da die benötigten Plexiglasplatten eine Größe von etwa 50 mal 100cm haben, war eine automatische Anpassung der Plattendicke nicht machbar. Als einzige Möglichkeit blieb das Anpassen der Plattendicke durch den lokalen Techniker, der ohnehin einmal am Tag eine Kalibration und Überprüfung des Systems durchführt. Da der Techniker das Radiometer aber nicht immer im Auge behalten kann, ist die Plattendicke oftmals nur schlecht an das recht wechselhafte spitzbergener Wetter angepaßt. Dieses hat große Auswirkungen auf die Datenqualität, denn aufgrund ihres längeren atmosphärischen Weges durch die Atmosphäre sind kleinere Signalwinkel gemäß Abschnitt 4.5 gegenüber höheren Elevationswinkel zu bevorzugen. Deshalb gibt es oftmals keine geeigneten Wasserdampfmessungen, da der Maximalwinkel von  $25^\circ$  überschritten wird.

Im Labor auf Spitzbergen gibt es einen Satz von verschiedenen Plexiglasplatten die zusammengenommen eine Dicke von 35 mm haben. Aus ihnen kann der Techniker nach Aufforderung des Meßprogrammes die entsprechend passende Plattendicke auswählen. Jeder Wechsel der Platten wird auf dem Kalibrationsprotokoll vermerkt und nachträglich den Housekeeping Daten zugefügt.

## 6.5 Das Steuerungsprogramm MCP

Im August 2000 wurde ein im Rahmen dieser Dissertation neu entwickeltes Programm zur Datenaufnahme und Steuerung der Radiometer installiert. Bis zu diesem Zeitpunkt war das Programm `MControl` der Firma »Radiometer Physics« in Benutzung. Dessen Möglichkeiten waren jedoch mit der Erweiterung auf das Wasserdampf-Frontend bereits voll ausgereizt, so daß für die Verwirklichung neuer Ideen ein ganz neues Programm notwendig wurde.

Dieses neue Programm MCP (für »Measurement Control Program«) ist in C-PlusPlus und Assembler geschrieben und besteht gegenwärtig aus etwa 15.000 kommentierten Codezeilen. Durch objektorientierte Programmierung sowie die Verwendung mehrerer Abstraktionsebenen für Hardwaretreiber (wie zum Beispiel die AOS Steuerung, die Motorsteuerung oder die Aufnahme der Tem-

peraturdaten), spezielle Problemlösungen (wie zum Beispiel Total-Power Messungen, Referenzstrahl Messungen oder Winkelberechnungen) und allgemeine Funktionen (wie zum Beispiel die Ein- und Ausgabe oder das Benutzungsschnittstelle) kann MCP sowohl für die drei Radiometer in Spitzbergen, als auch für das in Bremen stationierte 110GHz Ozon-Radiometer BreRAM (Abkürzung für »Bremer Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen«) verwendet werden. Eine Nutzung für das geplante RAMAS Radiometer in Summit, Grönland ist in der Planung. Besonderen Wert wurde bei MCP auf eine einfache Erweiterbarkeit, hohe Stabilität sowie die Möglichkeit zur Ferndiagnose via Internet gelegt. Aus Stabilitätsgründen läuft MCP in einer MS-DOS Umgebung.

Mit dem neuen Steuerungsprogramm wurde auch ein neues, abwärtskompatibel erweiterbares Datenformat eingeführt, das auch für zukünftige Radiometer und andere Meßgeräte verwendet werden kann. Die gesamten Wasserdampf sowie die Chlormonoxid-Daten seit der Meßsaison 1996/1997 wurden in das neue Format überführt.

## 6.6 Ablauf einer Messung

In Abbildung 6.9 ist die Datenstruktur dargestellt, in der das Programm MCP Messungen durchführt. Die Begriffe entstammen noch dem alten Programm MControl und wurden aus Gründen der Konsistenz beibehalten.

Ein »Cycle« besteht aus mehreren »Phasen«, wobei jede Phase mit der Auslesung der AOS Elektronik sowie gegebenenfalls einer bestimmten Position des Drehspiegels verknüpft ist. Innerhalb eines »Frame« werden die einzelnen Phasen integriert, so daß nach allen Cycles ein vollständiger Frame der jeweils alle aufintegrierten Phasen beinhaltet fertig ist. Der Frame wird als kleinstes Datum abgespeichert, wobei einige Housekeeping Daten für jeden einzelnen Cycle oder jede einzelne Phase mit gespeichert werden können. Innerhalb einer Messung werden mehrere Frames gemessen, dabei können Frames verschiedenen Typus wie zum Beispiel zur Systemkalibration, Referenzstrahl- oder Totalpowermessung je nach Meßschema gemischt werden. Vor und nach jeder Messung erfolgt eine Frequenzkalibration mittels des Kammgenerators.

Grundsätzlich wäre es wünschenswert die Informationen jedes Cycles zu

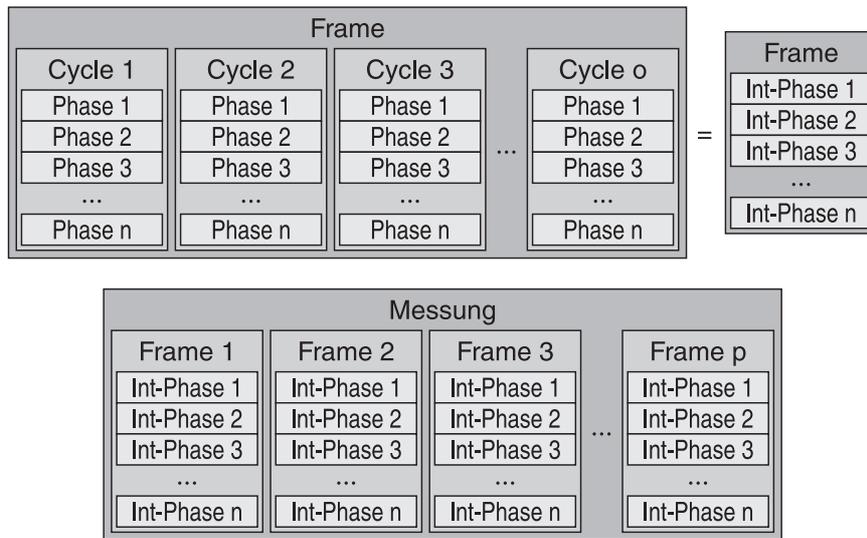


Abbildung 6.9: Die Datenstruktur einer Messung. Innerhalb eines Frames werden mehrere Zyklen mit einer immer wiederkehrenden Abfolge von Meßphasen aufintegriert. Das Frame ist die kleinste abgespeicherte Informationseinheit. Eine Messung besteht aus mehreren Frames.

speichern, doch das würde die Möglichkeiten aktueller Speichermedien sprengen. Pro Meßgerät fallen nach aktuellem Meßschema (mit etwa 20 bis 30 Zyklen je Frame) im Monat Daten in einer Größe von etwa 500MBytes an, die auf CD geschrieben und zur Auswertung nach Bremen geschickt werden.

In Abbildung 6.10 sind schematisch vereinfacht die Ablaufdiagramme von Referenzstrahl- sowie Totalpowermessung dargestellt. Während ersteres die übliche Methode für die Messung von Chlormonoxid und Wasserdampf ist, wird letztere für Ozon in Ny-Ålesund und Bremen verwendet. In Abschnitt 8.2 finden sich auch Wasserdampf Messungen die mit der Totalpower Methode gemessen wurden.

Der Ablauf der Referenzstrahl Methode ist recht komplex und soll hier nur vereinfacht dargestellt werden. Nach der Anpassung der empfangenen atmosphärischen Leistung an die Eingangsleistung des Spektrometers durch einen schaltbaren Abschwächer findet ein kurzer Referenz-Test statt. Hierbei wird geprüft, ob bei aktueller Plexiglasplattendicke beziehungsweise der aktuell herrschenden troposphärischen Opazität der mögliche Signalwinkel im erlaubten Bereich liegt und eine Messung damit sinnvoll ist. Beim Chlormonoxid-Radiometer findet anschließend eine Systemkalibration zur Bestimmung der Systemrauschtemperatur statt; da nicht ausreichend Stickstoff vorhanden ist

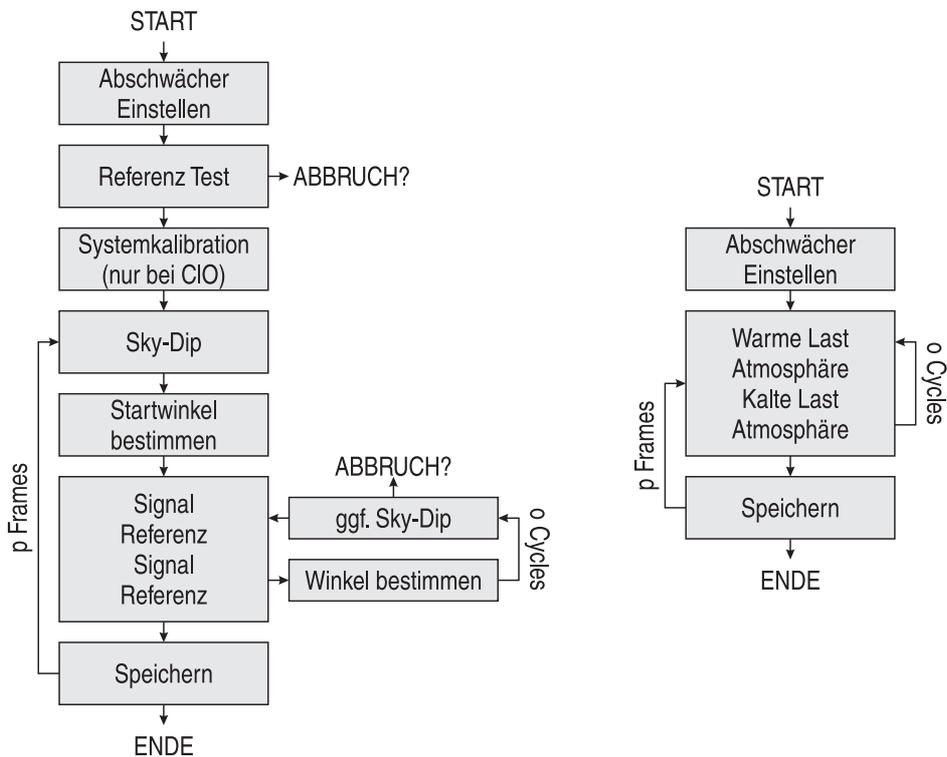


Abbildung 6.10: Ein stark vereinfachtes Ablaufdiagramme für eine Referenzstrahlungsmessung (Links) und eine Totalpowermessung (Rechts) mit dem Programm MCP.

kann diese beim Wasserdampf-Radiometer nur einmal am Tag durchgeführt werden. Für den »Sky-Dip« wird der erlaubte Signalwinkelbereich äquidistant unterteilt und Messungen der zugehörigen Intensitäten durchgeführt; durch Interpolation der Intensität in Referenzrichtung zwischen den Sky-Dip Intensitäten kann der optimale Signalwinkel bestimmt werden. Ein Meßzyklus besteht üblicherweise aus vier Phasen, je zweimal in Signal- und Referenzrichtung. Für jeden Zyklus wird der optimale Signalwinkel aus den Sky-Dip Daten neu bestimmt und gegebenenfalls, bei veränderten Witterungsbedingungen ein neuer Sky-Dip durchgeführt. Nach einer Anzahl von Zyklen wird der Frame gespeichert, nach einer Anzahl von Frames ist die Messung fertig. Weitergehende Informationen zur Berechnung der Folgewinkel aus Sky-Dip Daten sowie die Anpassung der Abschwächer finden sich in Anhang B.

Der Ablauf der Total-Power Methode ist ungleich einfacher. Nach Anpassung des schaltbaren Abschwächers findet eine Messung der Frames mit je-

weils einer Anzahl von Zyklen statt, die aus den vier Phasen Warme-Last, Atmosphäre, Kalte-Last und wieder Atmosphäre bestehen.

Wenn der arktische Winter endet und die Sonne über Ny-Ålesund zurückkehrt – zwischen Anfang Februar und Ende März – besitzt die Beobachtung von Chlormonoxid höchste Priorität. Üblicherweise wechseln sich dann Chlormonoxid- und Ozonmessungen ab und Wasserdampf wird nur gemessen, wenn das Wetter für Chlormonoxid zu schlecht wird. Im übrigen Jahr wird kein Chlormonoxid gemessen so daß sich Ozon- und Wasserdampfmessungen abwechseln.

Die Ozonmessung dauert etwa 30 Minuten, Wasserdampf- und Chlormonoxidmessungen jeweils etwa 60 bis 120 Minuten; die zwischen den Messungen stattfindenden Kammgenerator-Messungen zur Frequenzkalibrationen fallen zeitlich nicht ins Gewicht. An jedem Tag findet eine Systemkalibration von jeweils etwa 30 Minuten Dauer statt.

## 6.7 Bestimmung der Allan Varianz

Ein reelles Meßsystem ist kurzfristigen und langfristigen Schwankungen unterworfen, die Einfluß auf die Intensität des gemessenen Spektrums nehmen. Kurzfristige Schwankungen sind zum Beispiel das Eigenrauschen des Systems, die langfristigen Schwankungen sind primär in den Änderungen der Verstärkung begründet, die wiederum von Veränderungen der Temperaturen oder der Betriebsspannungen abhängig ist. Durch eine Vergrößerung der Integrationszeit lassen sich die Effekte des Rauschens bekanntlich unterdrücken; ab einer bestimmten Zeit wirken sich jedoch die langfristigen Schwankungen aus und überlagern die Verminderung des Rauschens.

Zur Beschreibung der zeitlichen Stabilität eines Meßsystems wird in der Mikrowellentechnik üblicherweise die »Allan Varianz« herangezogen. Sie geht zurück auf Barnes und Allan (1964) und zeigt die bestmöglich gewählte Integrationszeit zwischen den kurzfristigen und den langfristigen Schwankungen des Systems.

Die Vorgehensweise zur Bestimmung der Allan Varianz zeigen Schieder et al. (1985, 1986). Zu diesem Zweck werden  $n$  Einzelmessungen  $X_j$  mit einer geringen Integrationszeit  $t_{int}$  durchgeführt – üblicherweise liegt die Integra-

tionszeit im Bereich einer Sekunde. Durch sukzessives Zusammenfassen zu  $m + 1$  Mittelwerten  $Y_{i,k}$  von  $k$  aufeinander folgenden Messungen werden aus dem Datensatz Messungen einer längeren Integrationszeit erzeugt. Die Allan Varianz ergibt sich dann gemäß

$$\sigma_{A,k}^2 = \frac{1}{2(m-1)} \sum_{i=1}^m (Y_{i+1,k} - Y_{i,k} - \bar{Y}_k)^2 \quad (6.1)$$

mit

$$Y_{i,k} = \frac{1}{k} \sum_{j=(i-1)k+1}^{ik} X_j \quad \text{und} \quad \bar{Y}_k = \frac{1}{m} \sum_{j=1}^m Y_{j,k}.$$

Doppelt-Logarithmisch aufgetragen über der Integrationszeit  $k \cdot t_{int}$  erhält man einen »Allan Plot«. Auf der Basis von 20.000 Einzelmessungen von jeweils einer Sekunde Dauer ist er für das Wasserdampf Radiometer in Abbildung 6.11 dargestellt.

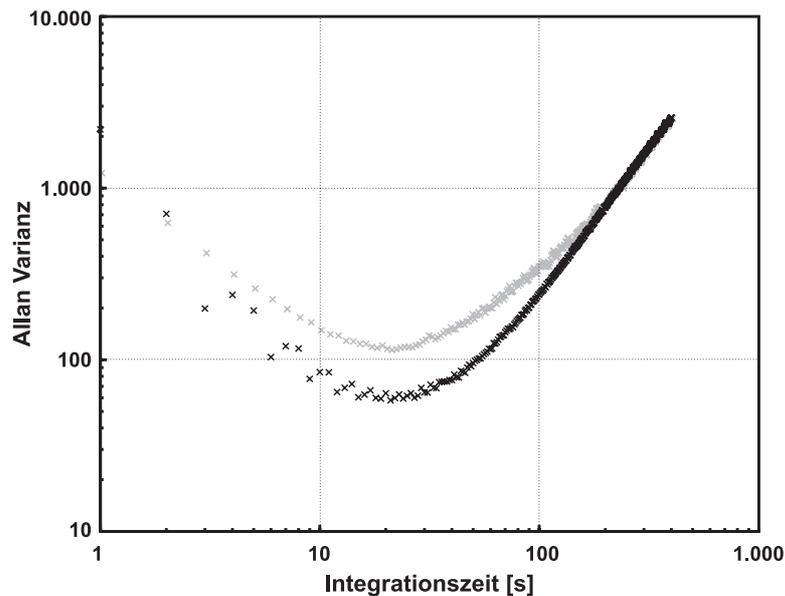


Abbildung 6.11: Die Mittlere Allan Varianz der Spektrometerkanäle des Wasserdampf Radiometers mit Blick auf die kalte Last (schwarz) und die warme Last (grau). Das Minimum der Varianz zeigt die optimale Integrationszeit. Links dieses Punktes wirken sich kurzzeitige Schwankungen durch Rauschen, rechts die langfristige Drift der Verstärker störend aus.

Die Allan Varianz kann für jeden Spektrometerkanal bestimmt werden und

zeigt abhängig von der Gerätebaseline große Unterschiede. In der Abbildung ist daher der Mittelwert der Kanäle 50 bis 1700 aufgetragen, wobei für jeden 50sten Kanal die Allan Varianz berechnet wurde – jeweils mit Blick auf die warme Last (grau) und kalte Last (schwarz). Das Minimum befindet sich bei beiden Kurven zwischen 20 und 30 Sekunden Integrationszeit. Die Messung mit Blick auf die kalte Last zeigt eine geringere Varianz als die Messung der warmen Last. Der Grund ist, daß bei letzterer die Spektrometerkanäle höher ausgesteuert sind, was letztendlich zu einer Verstärkung der Schwankungen und damit Varianz führt. Beide Kurven haben jedoch an der gleichen Stelle ihr Minimum.

Wie in Abschnitt 6.6 beschrieben, besteht das kleinste abgespeicherte Datum (ein Frame) aus einer Reihe von aufintegrierten Meßzyklen, wobei die Meßzeit in den jeweiligen Phasen des Zyklus immer eine Sekunde beträgt. Eine Vorgehensweise, die noch auf das alte Meßprogramm `MControl` zurückgeht und für das neue Programm erst einmal übernommen wurde.

Die Allan Varianz besagt, daß die gesamte Messung eines Frames innerhalb der durch die Allan Varianz vorgegebenen optimalen Integrationszeit durchgeführt werden sollte. Dieses einzuhalten ist jedoch aufgrund des kleinen Zeitfensters und der langen Spiegelstellzeiten sehr schwierig. Bisher wurde für das RAM mit einer sehr viel größeren Integrationszeit gearbeitet – die Zeit für ein Chlormonoxid Frame beträgt gegenwärtig 120 Sekunden, für ein Ozon Frame 150 Sekunden und für ein Wasserdampf Frame 180 .Sekunden. Für ein zukünftiges Meßschema sollte daher eine andere Vorgehensweise Anwendung finden. Anstatt wie bisher in stetig wechselnden Phasen Referenz- und Signalwinkel beziehungsweise warme Last, kalte Last und Atmosphäre mit dem Spiegel anzusteuern und jede Beobachtung nur eine Sekunde durchzuführen, sollte in Zukunft jede Phase nur einmal angefahren werden. Durch die bestmögliche Verteilung der optimalen Integrationszeit auf die verschiedenen Phasen ließe sich einiges an Meßzeit gewinnen.

Abbildung 6.12 zeigt die bisherigen Meßabläufe im Vergleich zu möglichen neuen. Es wird deutlich, daß bei den bisherigen Messungen sehr viel Zeit für das Stellen der Spiegel vergeudet wird. Sind es bei einer angenommenen Stellzeit von einer Sekunde (was unter der realen Stellzeit des Wasserdampf Radiometers liegt, wohl aber für das Chlormonoxid und das Ozon Radiometer stimmt) noch 50% der Meßzeit, so ließe sich diese bei einer optimierten Vorgehensweise auf auf unter 10% verringern. Bei der Totalpower Methode könnte zum

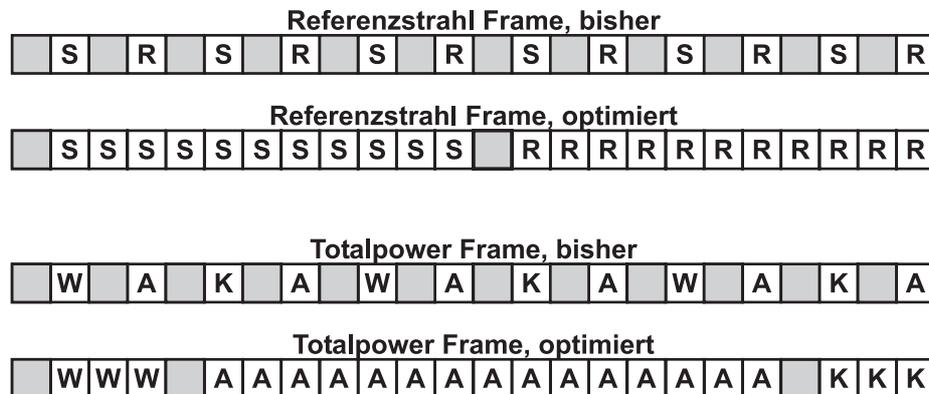


Abbildung 6.12: Beispiele von verschiedenen Schemata für die Messung nach der Referenzstrahl und Totalpower Methode. Angenommen wird eine optimale Integrationszeit von 24 Sekunden; R und S stehen für Referenzstrahl und Signalstrahl bei einer Referenzstrahl Messung; W, K und A stehen für warme Last, kalte Last und Atmosphärenmessung bei einer Totalpower Messung. Die Spiegelstellzeiten sind mit einer Sekunde angenommen und wurden grau unterlegt.

Ausgleich für eine mögliche Gerätedrift während der Messung jeweils eine mittlere warme und kalte Lastmessung bestimmt werden. Dazu könnten in der Auswertung die Messungen der kalten Last des vorherigen Frames und die Messungen der warmen Last des nachfolgenden Frames herangezogen werden.

## 6.8 Fazit zu diesem Kapitel

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zahlreiche Verbesserungen am 204GHz Chlormonoxid Radiometer vorgenommen. Die Baseline konnte durch mehrere Umbauten in den Jahren 1999 und 2000 deutlich verbessert werden, was sich bei der Auswertung des Winters 2000 positiv bemerkbar machte (siehe dazu noch Kapitel 7). Aufgrund der schlechten Meßbedingungen im Winter 2001 stehen die letzten Überprüfungen aber noch aus.

Ein weiterer Teil dieser Arbeit war der Aufbau eines zusätzlichen 22GHz Wasserdampf Frontends für das bestehende RAM Instrument. Obwohl das De-

sign des Gerätes im Vergleich zu den anderen Radiometern einfach gehalten ist, zeigen sich in Quasioptik oder Elektronik mehrere Stehwellen, deren Ursachen trotz intensiver Untersuchung nicht identifiziert werden konnten.

Die Steuerung von nunmehr drei Radiometern in Spitzbergen machte die Implementierung einer neuen Steuerungssoftware notwendig. Das neue Programm läßt sich modular anpassen und erweitern und wird auch für das BreRAM Instrument verwendet. Durch eine Veränderung des bisherigen Meßschemas ließe sich dabei eine besser Ausnutzung der Meßzeit im Verhältnis zu den Spiegelstellzeiten erzielen.

Im Anhang D sind die wichtigsten technischen Daten der Radiometer nachzulesen.



**Teil III**

# **Messungen in Ny-Ålesund**



## **7 Messungen stratosphärischen Chlormonoxids**

Im Rahmen dieser Arbeit wurde zur Auswertung der Chlormonoxid Messungen ein Satz von Auswerteprogrammen neu implementiert, die in mehreren Schritten von Spektren zu Spurengasprofilen führen. Am Anfang dieses Kapitels sollen die dazu verwendeten Methodiken vorgestellt werden; Informationen zu den Programmen selbst finden sich in Anhang A. Der Hauptteil dieses Kapitels beschäftigt sich jedoch mit den Ergebnissen unserer Chlormonoxid Messungen. Die große angelegte SOLVE-THESEO 2000 Kampagne bot für den Winter 1999/2000 die Gelegenheit zum Vergleich mit anderen Instrumenten. Zudem konnten erstmals hochaufgelöste Chlormonoxid Tagesgänge gemessen werden, die ausführlich diskutiert werden sollen.

### **7.1 Aufbereitung der Spektren**

Der erste Teil der Aufbereitung der Chlormonoxid Meßdaten besteht aus der Zusammenfassung und Leistungskalibrierung der Rohspektren einer Messung – im Folgenden Integration genannt. Im zweite Teil der Aufbereitung werden für jeden Tag, beziehungsweise an Tagen mit guten Wetterbedingungen auch für einzelne Messungen, »Tag minus Nacht« Differenzen gebildet, die schließlich in das Retrieval gehen.

Bei der Integration werden nicht alle Frames einer Messung übernommen. Abhängig von einigen Kriterien werden bestimmte Frames als qualitativ nicht ausreichend klassifiziert und verworfen. Die in dieser Auswertung verwendeten Schranken der Kriterien sind in Tabelle 7.1 zusammengefaßt.

Die Signalspektren des Chlormonoxid Radiometers werden gemäß der Referenzstrahl Methode gemessen; der dazu übliche Ablauf wurde in Abschnitt 6.6 ausführlich beschrieben. Aus einer vor jedem Frame durchgeführten Sky-Dip

Tabelle 7.1: Kriterien für den Ausschluß von Frames, wie sie in der durchgeführten Chlormonoxid Auswertung verwendet wurden.

Kriterium	Schranke
Maximale Winkelvariation innerhalb eines Frames	0,2°
Minimale Schranke für den Signalwinkel	6°
Maximale Schranke für den Signalwinkel	18°
Maximale Abweichung des mittleren Differenzspektrums	0,2K

Messung wird dabei zu jedem Zyklus innerhalb des Frame der optimale Signalwinkel bestimmt – siehe dazu auch den Anhang B. Liegen innerhalb eines Frames die Schwankungen der einzelnen Signalwinkel oberhalb einer Schranke, zum Beispiel aufgrund wechselhaften Wetters, wird der Frame verworfen.

Aus den Signalwinkeln der einzelnen Zyklen wird für die noch gültigen Frames ein mittlerer Winkel bestimmt. Sofern dieser Winkel über einer Maximalschranke, beziehungsweise unter einer Minimalschranke liegt wird der Frame verworfen. Wie in Abschnitt 4.5 beschrieben bedeutet ein geringer Elevationswinkel mehr Information über das Spurengas und damit letztendlich eine bessere Signalqualität. Die Maximalschranke ist dabei ein Erfahrungswert der von der Signalstärke des Spurengases abhängt. Die Minimalgrenze ist durch die Geometrie der Quasioptik vorgegeben, und insbesondere von der Strahlaufweitung abhängig.

Die noch gültigen Frames innerhalb einer Messung werden mittels Gleichung (4.25) von ihrem mittleren Signalwinkel auf Zenit Beobachtungsgeometrie umgerechnet. Hierbei fließt sowohl die am Anfang der Messung bestimmte Systemrauschtemperatur sowie der iterativ bestimmte Kontinuumsbeitrag der Troposphäre ein (siehe dazu Anhang B). Das Ergebnis ist ein kalibriertes Differenzspektrum<sup>1</sup>.

War bei der Messung der Abgleich zwischen Signal- und Referenzleistung erfolgreich, dann befindet sich die Leistung des kalibrierten Differenzspektrums nahe bei Null Kelvin Helligkeitstemperatur. Der Abgleich wird üblicherweise für 200 Spektrometerkanäle im Bereich der Signallinie durchgeführt; weicht der Mittelwert des Differenzspektrums dieser Kanäle zu weit von Null ab wird der Frame verworfen.

<sup>1</sup> Kalibriert bedeutet in diesem Fall, daß jedem Spektrometerkanal nicht mehr eine Zählrate, sondern eine Helligkeitstemperatur zugeordnet ist.

Die Differenzspektren aller gültigen Frames einer Messung werden gewichtet aufaddiert und ergeben damit eine integrierte Messung. Danach wird unter Verwendung der Kammgeneratormessungen jedem Spektrometerkanal eine Frequenz zugeordnet.

Ein Blick auf das Beispielspektrum in Abbildung 5.1 zeigt, daß die 204 GHz Chlormonoxidlinie auf der rechten Flanke der stark ausgeprägten 183 GHz Wasserdampflinie liegt. In sehr guter Näherung ergibt dieser in dem von uns betrachteten Frequenzbereich einen monoton fallenden Untergrund. Dieser wird von den integrierten Differenzspektren abgezogen.

Tabelle 7.2: Kriterien anhand der Chlormonoxid Spektren bei der durchgeführten Auswertung dem Tag oder der Nacht zugeordnet werden. Der Sonnen-Zenitwinkel bezieht sich auf einen Beobachter am Erdboden.

Parameter	Wert
Sonnenaufgang (SZA)	94,5°
Sonnenuntergang (SZA)	94,5°
Tag beginnt nach Sonnenaufgang	1 h
Tag endet vor Sonnenuntergang	1 h
Nacht beginnt nach Sonnenuntergang	3 h
Nacht endet vor Sonnenaufgang	1 h

Im zweiten Teil der Aufbereitung werden Tag und Nachtmessungen voneinander getrennt. Wie in Abschnitt 2.4 beschrieben, besitzt Chlormonoxid in den Höhenbereichen von 20 bis 30 km einen ausgeprägten Tagesgang, bei dem in der Nacht das aktive Chlor bis auf einen kleinen thermisch dissoziierten Rest in seinem Dimer  $(\text{ClO})_2$  vorliegt. Damit findet sich in den nachts gemessenen Spektren kaum Informationen über die Chlormonoxid Spurengaslinie, dafür aber die gleichen instrumentellen Baseline-Effekte wie in den Tagesmessungen. Nach de Zafra et al. (1989) kann man sich dieses zu Nutze machen um die Baseline-Effekte in den auszuwertenden Spektren zu minimieren. Dazu werden von den Tagesmessungen die Nachtmessungen spektral abgezogen – eine sogenannte »Tag minus Nacht« Differenz wird gebildet. Dieses Verfahren hat sich in der Mikrowellenradiometrie der verschiedenen Chlormonoxid Spurengaslinien weitestgehend durchgesetzt.

Wichtig ist hierbei die Frage, welche Spektren zum Tag und welche zur Nacht gehören – die verschiedenen Kriterien können als Parameter der Aus-

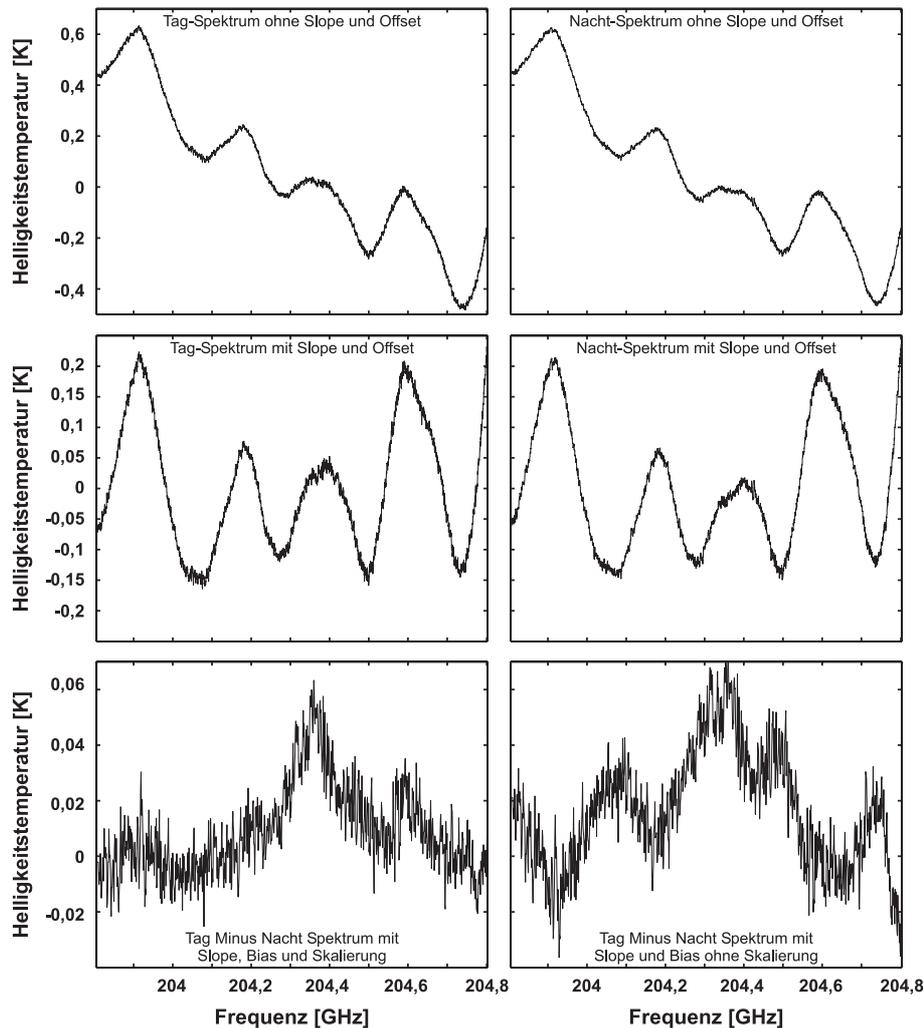


Abbildung 7.1: Beispiele für die Aufbereitung der ClO Spektren. In den oberen Feldern sind die integrierten Tag und Nacht Spektren abgebildet. Die mittlere Felder sind die Tag und Nacht Spektren, wobei ein Slope und ein Bias (Rampe und Untergrund) abgezogen wurde. Unten-links ist das daraus resultierende »Tag minus Nacht« Spektrum mit Skalierung, unten-rechts ohne Skalierung dargestellt (Daten vom 3. März 2000).

werteprogramme frei gewählt werden und sind für die in dieser Arbeit durchgeführte Auswertung in Tabelle 7.2 zusammengefaßt. Als Zeitpunkt für den Sonnenauf- beziehungsweise Sonnenuntergang wurde der Sonnen-Zenitwinkel verwendet, bei dem in 20 bis 25 km Höhe (in dem uns interessierenden Stratosphärenbereich) die Sonne gerade unter dem Horizont steht. Wie in Abschnitt 2.4 beschrieben geschieht die Chloraktivierung nach dem Sonnenaufgang recht schnell, so daß nach einer Stunde ein Großteil des maximal vorhandenen ClO

vorliegen sollte. Aus diesem Grund werden alle Messungen, die eine Stunde nach Sonnenaufgang stattfanden, dem Tag zugeordnet. Dieser dauert in diesem Fall bis eine Stunde vor Sonnenuntergang. Nach dem Sonnenuntergang bedarf es einige Zeit bis der Großteil des Chlormonoxids in sein Dimer umgesetzt wurde – im Rahmen der vorgenommenen Auswertung wurde hierfür eine großzügige Zeit von drei Stunden angesetzt. Die Nacht dauert ebenfalls bis eine Stunde vor Sonnenaufgang.

Bei einer genaueren Untersuchung von Tag- und Nachtspektren zeigt sich, daß diese nur in seltenen Fällen perfekt zueinander passen. Die Stehwellen variieren in ihren Amplituden und die Änderungen des troposphärischen Wasserdampfes führt zu einem variablen Signaluntergrund. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher ein neues Verfahren implementiert, bei dem die Nacht- an die Tagesspektren durch Anpassung eines Slope, eines Bias sowie eines Skalierungsfaktors (ein Multiplikator für das ganze Spektrum) jeweils aneinander angeglichen werden. Aber nicht bei jedem Spektrumspaar funktioniert das perfekt, so daß eine visuelle Kontrolle der Ergebnisse durch den Auswertenden erforderlich bleibt. Dabei hat sich als Sinnvoll erwiesen die Tag-minus-Nacht Anpassung jeweils ohne Anpassung, mit Bias und Slope, mit Skalierungsfaktor und schließlich mit allen drei Parameter durchzuführen und für jeden Tag das Ergebnis auszuwählen, welches die geringsten Baseline-Effekte zeigt. Abbildung 7.1 zeigt ein Beispiel für die Anpassung von Tag- und Nachtspektren.

Durch die Anpassung kann letztlich ein nicht bestimmbarer Fehler in den Ergebnissen verursacht werden. Aus diesem Grund werden von den so behandelten Daten nur solche Tag-minus-Nacht Spektren in die weitere Auswertung übernommen, bei denen die Anpassung innerhalb bestimmter Grenzen geschehen ist – andernfalls sind die Unterschiede der Baseline zwischen Tag- und Nachtmessungen zu groß für eine vertrauenswürdige Auswertung.

Das Ergebnis der Aufbereitung sind baselineminimierte Differenzspektren die üblicherweise zu Tagesmittelwerten zusammengefaßt werden. Unter besten Bedingungen wie kaltem Wetter und wolkenfreiem Himmel können aber auch Spektren für kürzere Meßzeiträume zusammengefaßt und invertiert werden.

Wie in Abschnitt 2.4 beschrieben existiert aufgrund thermischer Dissoziation des Dimers in Höhenbereichen zwischen 20 und 30 km auch Nachts ein geringer Anteil von Chlormonoxid, der abhängig von der atmosphärischen Temperatur bis zu 10% betragen kann. Bei Verwendung der Tag-minus-Nacht Spektren bedeutet dieses, daß im Ergebnis das bestimmte Chlormonoxid um

diesen Betrag unterschätzt werden kann. Solomon et al. (2000) geben für ihre Messungen auf dem antarktischen Kontinent mit den üblicherweise geringeren Temperaturen in der Stratosphäre einen Fehler von maximal 5% für das Tag-minus-Nacht Verfahren an.

Von 35km an aufwärts wird der Tagesgang schwächer und spielt ab 50km keine entscheidende Rolle mehr. Die in diesem Höhenbereich durch Tag-minus-Nacht Differenzen bestimmten Ergebnisse sind in absoluten Zahlen daher weniger vertrauenswürdig. Zur qualitativen Betrachtung der Veränderungen der Chlormonoxid Konzentrationen lassen sie sich aber sehr wohl verwenden.

## 7.2 Chlormonoxid Retrieval

Die Tag-minus-Nacht Spektren werden in das Retrieval übernommen. Dieses besteht aus mehreren Programmen von Ingo Wohltmann, die schon bei einer vorhergehenden Arbeit zu diesem Thema verwendet wurden; für eine genaue Beschreibung sei daher an dieser Stelle auf Barry (2000) verwiesen. Innerhalb der Inversion werden an das Vorwärtsspektrum mehrere Stehwellen (siehe dazu Tabelle 6.1) sowie ein Slope und ein Bias angepaßt. Im Gegensatz zu früheren Auswertungen wurde jedoch auf eine Glättung von verrauschten Spektren verzichtet.

Abbildung 7.2 zeigt ein Beispiel für eine Chlormonoxid Inversion vom 3. März 2000. Im linken Feld sieht man das eingehende Spektrum mit dem sich aus dem Retrieval ergebenden Vorwärtsspektrum. Für das Jahr 2000 wurde eine Stehwelle an das Vorwärtsspektrum angepaßt. Im rechten Feld ist das Ergebnis der Inversion mit dem zugehörigen statistischen Fehler dargestellt. Üblicherweise betrachten wir das Chlormonoxid in einer Höhenschicht bei 20km (beziehungsweise auf der 475 K Isentrope). In dieser Höhenschicht erwarten wir die Chloraktivierung, zudem ergeben die Auflösungsfunktionen hier die beste Höhenauflösung von etwa 10km. Man erkennt, daß die Inversion den Spitzenwert der Chloraktivierung für diese Inversion in einer Höhe von etwa 23km bestimmt.

Für die Inversion wird ein a priori Profil für die Chlormonoxid Verteilung benötigt. Das in der Auswertung verwendete a priori Profil entspricht einem

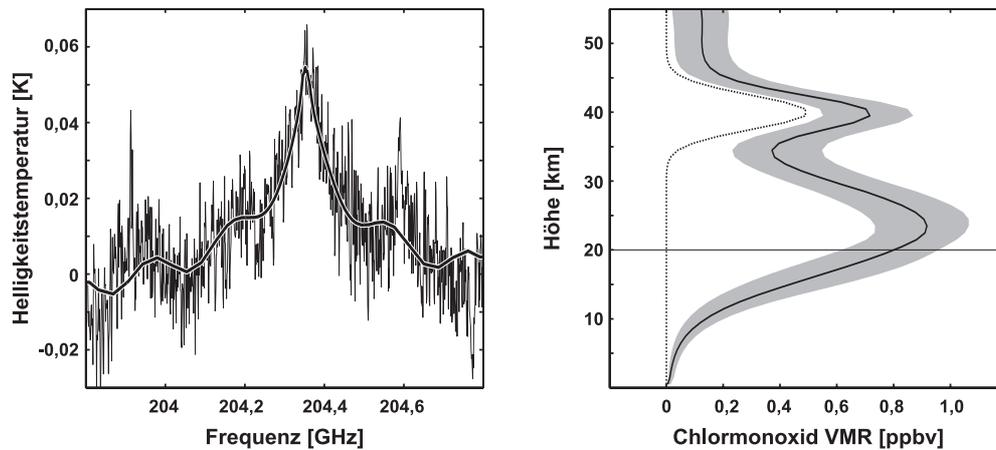


Abbildung 7.2: Beispiel für eine Chlormonoxid Inversion. Links ein Spektrum (Tagminus-Nacht Differenz) sowie das aus der Inversion resultierende Vorwärtsspektrum mit einer angepassten Stehwelle. Rechts das Chlormonoxidprofil mit dem grau unterlegten statistischen Fehler; die gepunktete Linie ist das für die Inversion verwendete a priori Spurengasprofil, dessen Kovarianz für die Inversion mit 1 ppbv angenommen wurde (Daten vom 3. März 2000).

Zustand ungestörter Chemie – also einem Zustand, bei dem zwischen 20 und 30 km kein Chlormonoxid vorhanden ist. In diesem Höhenbereich wurde es daher auf Null gesetzt, das obere Chlormonoxid Maximum wurde in einer Höhe von 40 km zu einer Gaußverteilung mit einem Maximum von 0,5 ppbv und der Halbwertsbreite 6 km angesetzt. Die Kovarianz des a priori Profils wurde mit 1 ppbv angesetzt. Durch diese Vorgaben wird gewährleistet, daß das untere Maximum des Ergebnisses unterhalb von 30 km aus der Inversion stammt; das obere Maximum wird hingegen nur ein skaliertes a priori Profil sein. Das bei dieser Auswertung verwendete a priori Profil ist in Abbildung 7.2 im rechten Feld als Punktlinie dargestellt.

### 7.3 Probleme bei der Kalibration der internen kalten Last

Die interne kalte Last befindet sich auf der ersten der beiden Kühlstufen des Chlormonoxid Radiometers und besitzt eine Temperatur von etwa 60 K. Die

Temperatur wird mittels eines PT100 PTC-Widerstandes am Ort der Last bestimmt und mit den Housekeeping Daten abgespeichert.

In den bisherigen Auswertungen wurde die Temperatur der internen kalten Last anhand der externen kalten Last – einem Dewar mit flüssigem Stickstoff – durch eine Totalpower Messung einmal am Tag kalibriert. Die kalibrierte Temperatur wurde in der weiteren Auswertung verwendet.

Im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Untersuchungen zeigten jedoch, daß der in Ny-Ålesund vor Ort mittels eines Verflüssigers produzierte Stickstoff mit einem nicht unerheblichen Anteil von Sauerstoff »verunreinigt« ist. Die Tests wurden mit einem in Deutschland an hochreinem Stickstoff geeichten elektronischen Meßgerät durchgeführt. Die Messungen zeigten bei frisch entnommenem Stickstoff eine Temperatur von etwa 79 K, was schon 1,6 K über der nominalen Siedetemperatur von 77,4 K liegt. Innerhalb von 24 Stunden – dem üblichen Turnus zwischen zwei Dewar Befüllungen – verdampft etwa 80% des Inhaltes. Das Restgemisch aus Stickstoff und Sauerstoff hatte zuletzt eine Temperatur von etwa 83,2 K. Gemäß der Siedekurve für Stickstoff-Sauerstoff Gemische wie man sie zum Beispiel bei Holleman et al. (1995) findet ergibt sich, daß der Anteil des Sauerstoffes dabei von anfänglich etwa 25% auf über 60% angestiegen ist.

Grundsätzlich sollte der verwendete PT100 Temperaturfühler mit seiner spezifizierten Genauigkeit von einem Kelvin bessere Ergebnisse liefern als die nachträgliche Stickstoffkalibration, daher wurde im Rahmen dieser Arbeit auf letztere Verzichtet.

## **7.4 Chloraktivierung und Ozonabbau im Winter 2000**

Der Winter 1999/2000 war durch die internationale Satelliten-Validationskampagne SOLVE-THESEO 2000 (Abkürzungen für »SAGE III Ozone Loss and Validation Experiment« und »Third European Stratospheric Experiment on Ozone«) geprägt, die gemeinsam von der NASA und der europäischen Union durchgeführt wurde. Mit zahlreichen Instrumenten waren mehr als 500 Wissenschaftler aus über 20 Ländern beteiligt, darunter auch die NDSC Station in Ny-Ålesund mit dem RAM. Aufgrund der verschiedenen Chlormonoxid Meß-

instrumente, die an der Kampagne teilnahmen, haben wir für diesen Winter die Möglichkeit zahlreicher Vergleiche. Einen ausführlichen Überblick über alle Aspekte von SOLVE-THESEO 2000 sowie die verschiedenen beteiligten Meßgeräte gibt zum Beispiel Newman et al. (2001).

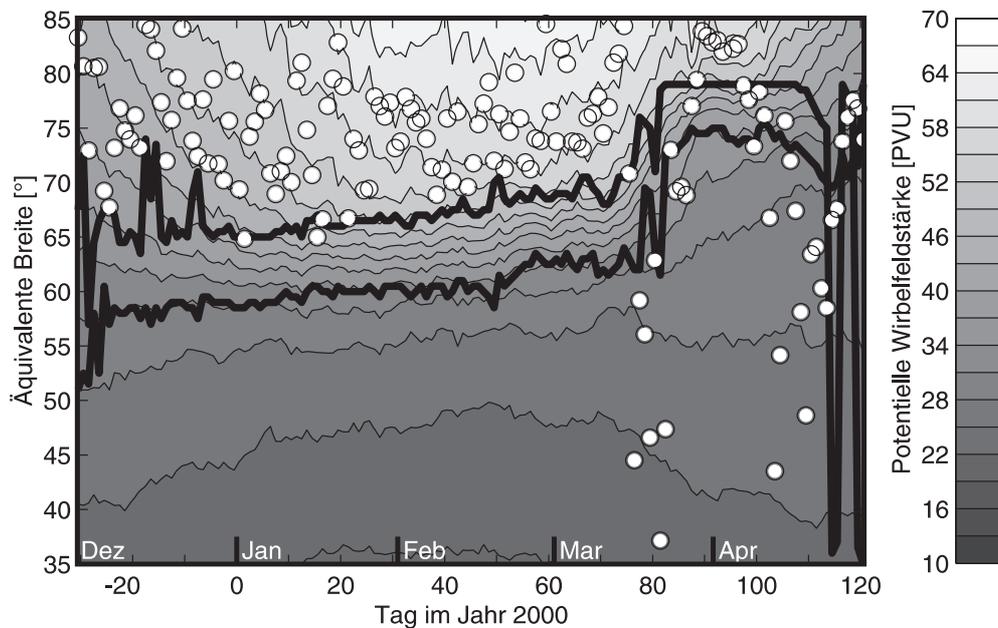


Abbildung 7.3: Der nördliche Polarwirbel für den Winter 1999/2000, dargestellt durch die potentielle Vortizität auf der äquivalenten Breite. Die weißen Punkte entsprechen dem Standort Ny-Ålesund, die dicken Linien sind der innere und äußere Wirbelrand. Von Januar bis Mitte März 2000 war der Wirbel mit einem hohen Gradienten der PV in seinem Randbereich sehr stabil; danach spaltete er sich, um noch bis Mitte April in kleinerer Ausdehnung weiter zu existieren (Berechnet aus Daten des ECMWF).

Die atmosphärische Situation entwickelte sich für die Kampagne ausgesprochen günstig. Wie aus Abbildung 7.3 ersichtlich bildete sich der Polarwirbel im Winter 1999/2000 Anfang Dezember 1999. Nach geringen Fluktuationen im Dezember blieb er vom Januar bis Mitte März mit einem ausgeprägten Gradienten über seinen Randbereich sehr stabil. Genauer lassen sich die einzelnen Stadien der Entwicklung in Verbindung mit Abbildung 7.4 erkennen. Im Zeitraum von Januar bis Mitte März war der Polarwirbel ein zusammenhängendes Gebiet, wobei der hohe Gradient des Randes dafür sorgte, daß sich kaum Filamente von ihm ablösten. Um den 17. März begann der Wirbel in zwei Teile zu zerfallen. Das Filament löste sich schnell auf, so daß ein einziger, geschrumpf-

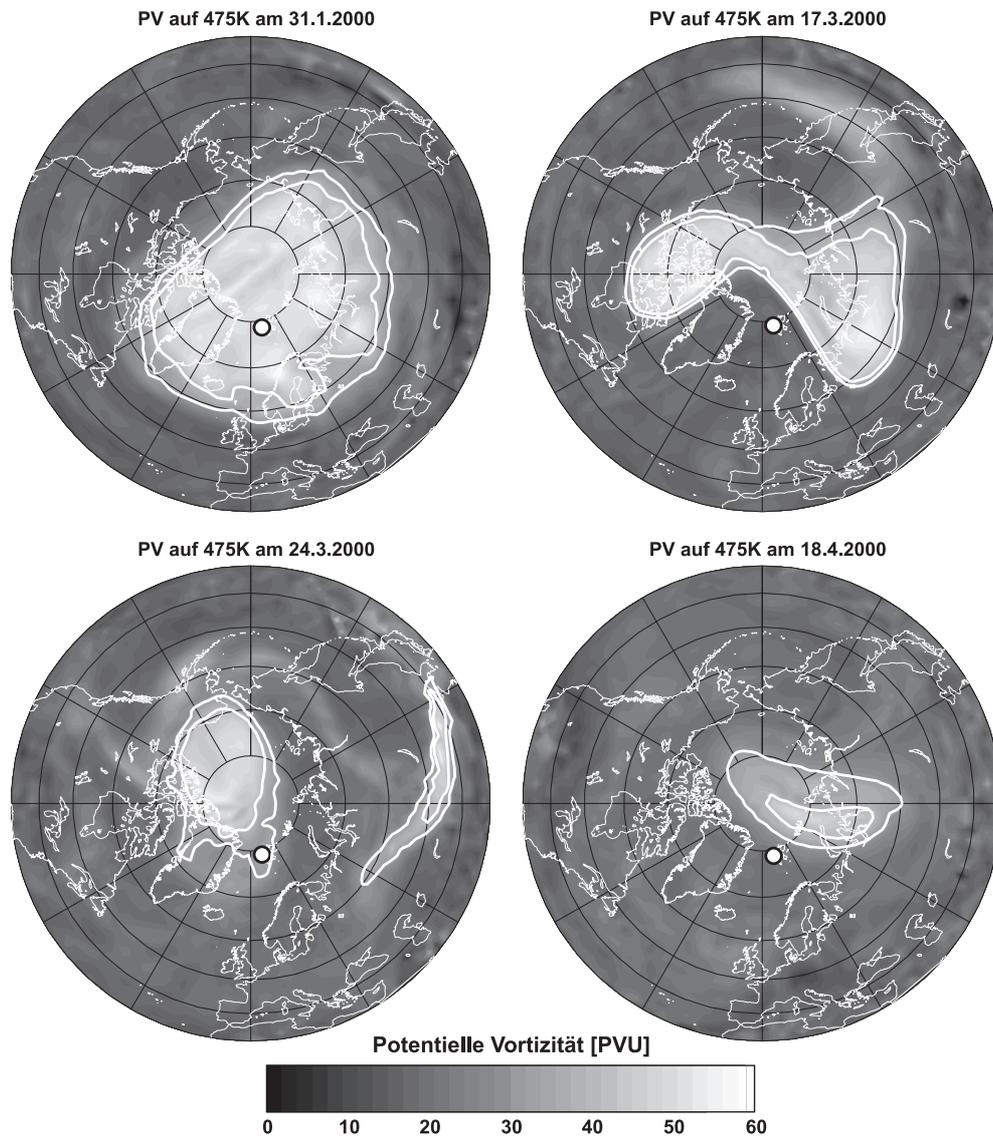


Abbildung 7.4: Vier Beispiele für die Entwicklung des Polarwirbels im Winter 2000. Dargestellt ist jeweils die nördliche Hemisphäre, farbcodiert ist die potentielle Vortizität in PVU; der Rand des Wirbels ist durch dicke weiße Linien und der Standort Ny-Ålesund durch einen weißen Punkt markiert. Im Januar (oben-links) war der Wirbel sehr symmetrisch und polzentriert, ein Zustand der bis etwa Mitte März anhielt. Dann (oben-rechts) spaltete er sich und ein großes Filament begann sich abzulösen. Kurze Zeit später (unten-links) hatte sich das Filament schon fast aufgelöst (die Überbleibsel sind über Süd-Sibirien zu finden), wobei der kleinere Restwirbel bis Mitte April (unten-rechts) weiter existierte (Berechnet aus Daten des ECMWF).

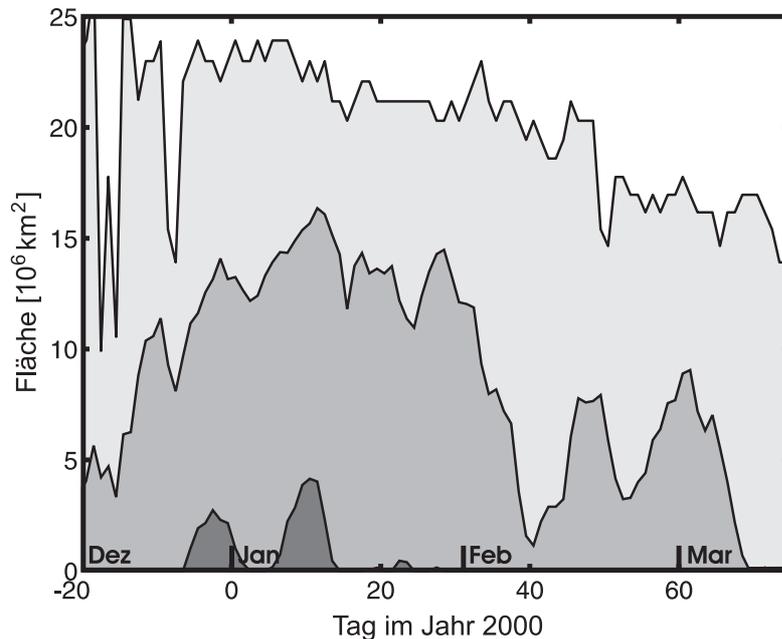


Abbildung 7.5: Die Fläche des Polarwirbels und der polaren Stratosphärenwolken auf der 475 K Isentrope (circa 20 km Höhe), die sich möglicherweise gebildet haben. Die Fläche des Polarwirbels ist hellgrau dargestellt, die der PSCs vom Typ I (SAT, NAT oder STS) mittelgrau und die vom Typ II (Eis-PSCs) in dunkelgrau (nach Klein et al. (2001), Berechnet aus Daten des ECMWF).

ter Polarwirbel zurückblieb. Dieser hielt sich noch bis Mitte April um dann langsam zu zerfallen.

Manney und Sabutis (2000) beschreiben den Winter 1999/2000 als einen der kältesten in den letzten 20 Jahren. Bis in den März hinein gab es Temperaturen, die tief genug für die Bildung von PSCs des Typs I waren (unterhalb von etwa 195 K). An zahlreichen Tagen im späten Dezember und im Januar waren die Temperaturen sogar tief genug für die Bildung von Eis-PSCs des Typs II (unterhalb von etwa 187 K). Abbildung 7.5 zeigt eine Modellrechnung für die Fläche der PSCs innerhalb des Polarwirbels, die sich aufgrund der vorhandenen Temperaturen ergeben haben können. Letztlich gibt es kein Monitoring-Verfahren zur Beobachtung von PSCs, so daß nur Modellrechnungen aufgrund klimatologischer Rechnungen möglich sind. Die langen Zeiträume, in denen PSCs vorhanden waren lassen für das Jahr 2000 bis in den März hinein große Mengen aktivierten Chlors erwarten.

Bei der Reaktivierung des Radiometers Anfang Februar 2000 wurde die bis-

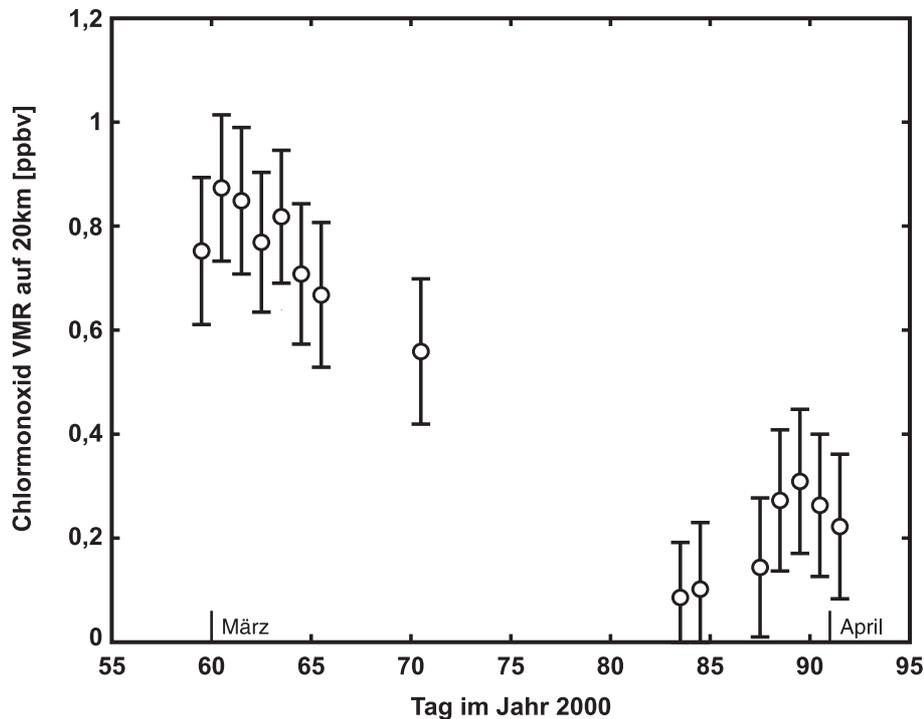


Abbildung 7.6: Die Ergebnisse des Chlormonoxid Radiometers in einer Höhe von 20km. An zwei Perioden mit guten Wetterbedingungen am Anfang und Ende März 2000 konnten insgesamt 15 erfolgreiche Messungen durchgeführt werden. Der Spitzenwert wurde mit etwa 0,87 ppbv am 1. März gemessen.

herige Mischerdiode zerstört; die Reparatur dauerte bis Ende Februar, so daß erst ab diesem Zeitpunkt gemessen werden konnte. Das Jahr 2000 war aufgrund der guten Rahmenbedingungen – zahlreiche Tage mit kaltem, klarem Wetter – aber dennoch für das RAM äußerst erfolgreich. Die Messungen starteten am 29. Februar (Tag 59) und ergaben für sieben aufeinander folgende Tage erfolgreiche Messungen. In der sich darauf anschließenden Schlechtwetterperiode bis zum 24. März konnte nur an einem Tag eine Messung durchgeführt werden. Zwischen dem 24. März und dem 1. April konnten dann noch einmal sieben erfolgreiche Messungen erfolgen.

Die Ergebnisse sind in Abbildung 7.6 zusammengefaßt. Sie zeigt das gemessene Chlormonoxid auf einer Höhe von 20km. Der höchste Chlormonoxid Wert wurden am 1. März 2000 mit etwa 0,87 ppbv gemessen. Zwischen dem 29. Februar und dem 11. März (Tag 70) ergibt sich eine lineare Abnahme des Chlormonoxids auf etwa 0,56 ppbv. In der zwei Wochen später folgenden Meß-

periode zeigt das Chlormonoxid Werte, die mit 0,25 ppbv nur noch wenig über denen für eine ungestörte Chemie liegen. Abgesehen von den Messungen am 24. und 25. März (die Tage 83 und 84) fanden alle Messungen innerhalb oder im Randbereich des polaren Wirbels statt.

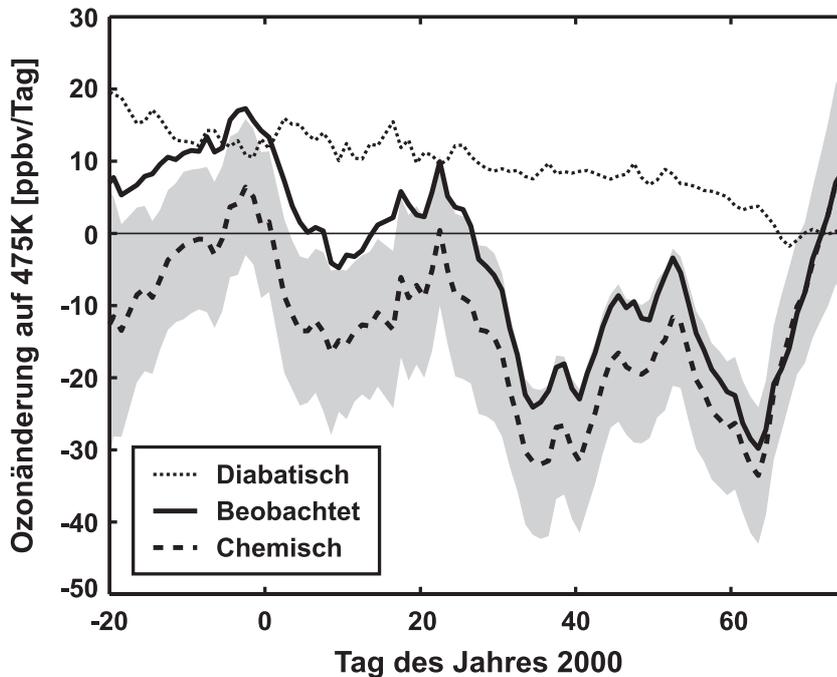


Abbildung 7.7: Die Veränderungen des Ozons auf der 475K Isentrope nach Klein et al. (2001). Gezeigt wird der vom Ozon Radiometer des RAM beobachtete Ozonverlust (dicke Linie) und die Änderung aufgrund diabatischer Abkühlung und dem sich daraus ergebenden Absinken der Luftmassen (dünne Punktlinie). Die Differenz ist der chemische Ozonverlust (dicke Punktlinie mit Fehlerbereich in grau).

Mit dem Ozon Radiometer-Frontend des RAM werden in unserer Arbeitsgruppe die jährlichen Veränderungen des stratosphärischen Ozons beobachtet. Der chemische Ozonverlust im Winter, der auf aktives stratosphärisches Chlor zurückgeht, läßt sich jedoch nicht direkt messen. Er wird von mehreren dynamischen Effekten überdeckt. Neben horizontalen Transportprozessen, die sich für einen zeitlich gemittelten Polarwirbel aufheben sollten, gibt es noch adiabatische und diabatische Änderungen. Bei Klein et al. (2001) wurden letztere mittels eines Strahlungstranport Modells in die beobachteten Ozonveränderungen eingerechnet und so der chemische Ozonverlust für das Jahr 2000 bestimmt. Das Ergebnis ist in Abbildung 7.7 dargestellt. Im Rahmen der Überlappung der

Meßergebnisse zwischen Tag 59 und 70 zeigt sich, daß die vom Chlormonoxid Radiometer beobachtete Chloraktivierung mit dem Zeitraum übereinstimmt, in dem vom Ozon Radiometer ein starker Ozonverlust beobachtet wurde.

Die Ergebnisse des RAM decken sich dabei auch mit anderen Untersuchungen, die im Rahmen von SOLVE-THESEO 2000 durchgeführt wurden. Laut Stimpfle et al. (2001) war das Chlor schon im Dezember 1999 vollständig aktiviert. Dabei haben Wagner et al. (2001) in Untersuchungen von Daten des GOME Instruments (Abkürzung für »Global Ozone Monitoring Experiment«) auf dem ERS-2 Satelliten die seit dem Start im Jahre 1995 höchsten Werte für die Aktivierung festgestellt. In Verbindung mit der in diesem Winter langen Lebensdauer der polaren Stratosphärenwolken, die bis in den März hinein existiert haben, führte dieses zu einer starken Ozonabnahme. Die von Newman et al. (2001) angegebene Abnahme von etwa 60% auf Basis aller im Rahmen von SOLVE-THESEO 2000 gesammelten Daten für eine Höhe von 20km wurde vom RAM indes nicht beobachtet. Unsere Auswertungen zeigen in der Summe eine Ozonabnahme von etwa 40%, wobei die Höhenauflösung des RAM von 10km jedoch eine Unterschätzung des tatsächlichen Wertes erwarten läßt.

## **7.5 Der Winter 2000 im Vergleich zum ASUR Instrument**

Das »Airborne Submillimeter Radiometer« (abgekürzt ASUR) der Universität Bremen ist ein Meßgerät, das nach den gleichen Funktionsprinzipien wie das RAM arbeitet. Es besitzt im Gegensatz zum RAM einen mit flüssigem Helium gekühlten SIS-Mischer (für »Semiconductor-Insulator-Semiconductor«) mit einer Systemrauschetemperatur von 550 bis 1500K(abhängig von der genauen Meßfrequenz). Er ist damit weitaus empfindlicher als der im RAM verwendete Schottky-Mischer.

Der beobachtete Frequenzbereich des ASUR Instruments liegt zwischen 604,3 und 662,3GHz, wobei ein Beobachtungsfenster mit einer Bandbreite von etwa 1,5GHz frei in diesem Bereich positioniert werden kann. Innerhalb des möglichen Frequenzbereiches befinden sich einige interessante Spurengaslinien, wie zum Beispiel Ozon, HCl, HNO<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O und insbesondere auch ClO

– letztere befindet sich bei einer Frequenz von 649,448 GHz. Der durch das Gerät beobachtbare Höhenbereich liegt zwischen 16 und 50 km mit einer Höhenauflösung von etwa 6 bis 10 km in der unteren Stratosphäre. Der Meßfehler liegt bei maximal 0,2 ppbv.

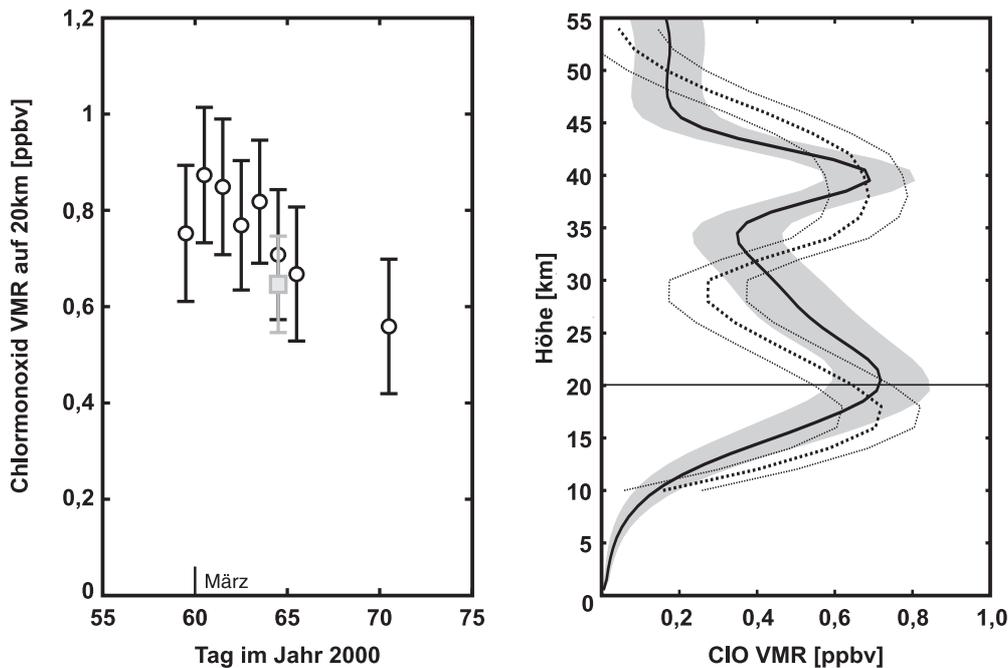


Abbildung 7.8: Links: Die RAM Chlormonoxidmessungen von Anfang März 2000 sowie als graues Viereck mit Fehlerbalken am 5. März die Messung des ASUR Gerätes; jeweils in einer Höhe von 20 km. Für den 5. März ergeben sich in absoluten Zahlen Werte von 0,71 ppbv für das RAM 0,65 ppbv für das ASUR. Rechts: Die Profile vom 5. März 2000; RAM als durchgezogene Linie mit grau unterlegtem Fehlerbereich und ASUR als gepunktete Linie mit gepunktetem Fehlerbereich.

Wie in Abschnitt 5.1 beschrieben ist die Atmosphäre aufgrund des troposphärischen Wasserdampfes für Mikrowellenmessungen jenseits von 400 GHz optisch dicht. Das ASUR Instrument wurde aus diesem Grund als flugzeuggetragenes Gerät konzipiert, das oberhalb der Troposphäre in einer Höhe von etwa 10 km seine Messungen durchführt. Üblicherweise wird das Forschungsflugzeug Falcon des DLR als Träger verwendet; während der Kampagne wurde ASUR jedoch auf der DC-8 der NASA eingesetzt. Eine ausführliche Beschreibung des ASUR Instrumentes findet sich zum Beispiel bei von König (2000).

Alle Ergebnisse der SOLVE-THESEO 2000 Kampagne in Hinblick auf das ASUR finden sich bei Rex et al. (2001) und Bremer et al. (2001).

Im März 2000 führte das ASUR Instrument auch Messungen innerhalb des Polarwirbels in der Nähe von Ny-Ålesund durch. Am 5. März 2000 wurden zwischen 13 Uhr 20 und 13 Uhr 30 insgesamt vier Chlormonoxid Messungen innerhalb eines Radius von 250km um Ny-Ålesund durchgeführt. Abbildung 7.8 zeigt den Mittelwert dieser Messungen im Vergleich zu den Ergebnissen des RAM. Da das ASUR Instrument in etwa die gleiche Höhengauflösung wie das RAM besitzt, wurde keine Umrechnung der Profile durchgeführt.

Im linken Feld sind die RAM Messungen vom Anfang März aufgetragen, wobei die ASUR Messung als graues Viereck dargestellt ist. Als Ergebnis zeigt sich, daß unsere Messungen verglichen mit der ASUR Messung innerhalb der Fehlergrenzen sehr gut übereinstimmen. Während das RAM für den 5. März in 20km Höhe eine Chlormonoxidkonzentration von 0,71 ppbv angibt, liegt das ASUR Ergebnis mit 0,65 ppbv nur insignifikant darunter.

Im rechten Feld sind zum Vergleich die Profile des entsprechenden Tages abgebildet. Während das RAM den Chlormonoxid Maximalwert bei etwa 21 km sieht, befindet er sich beim ASUR Instrument schon in 18km Höhe. Beide Geräte bestimmen ihn aber mit etwa 0,72 ppbv gleich hoch. Im Rahmen der Höhengauflösungen von 12km für das RAM beziehungsweise 6 bis 10km für das ASUR ist die Übereinstimmung damit außergewöhnlich gut.

## **7.6 Der Winter 2000 im Vergleich zum Modell SLIMCAT**

Das zum Vergleich herangezogene Modell SLIMCAT wurde von Martyn Chipperfield entwickelt und wird an den Universitäten Cambridge und Leeds betrieben. Es ist ein globales dreidimensionales chemisches Transportmodell (üblicherweise abgekürzt mit CTM) bei dem ein chemisches Modell mit physikalischen Prozessen gekoppelt wurde. SLIMCAT berücksichtigt die wichtigsten Spurengase wie insbesondere Chlormonoxid und Ozon, sowie mehrere Arten von Partikeln wie flüssige Aerosole aber auch PSCs vom Typ I und II.

Zur Initialisierung wurden Daten aus Messungen des »Microwave Limb Sounder« (kurz MLS) an Bord des UARS Satelliten verwendet. Der üblicher-

weise verwendete SLIMCAT Modellauf startet mit dem 22. Oktober 1991 und ergibt damit einen langjährigen, kontinuierlichen Datensatz. Der Standardlauf liefert jeweils um 12 Uhr UTC seine Daten. Für den SOLVE-THESEO 2000 Winter wurden jedoch auch im November 1999 ein saisonaler Lauf gestartet, bei dem die Daten mit einer Frequenz von 6 Stunden extrahiert wurden – siehe dazu auch Sinnhuber et al. (2000). Das Modell liefert Spurengas VMR auf Isentropen von 335 bis etwa 2700 K, abhängig von der Version in 12, 18 oder 24 Ebenen (die angegebene Höhenauflösung beträgt dabei etwa 2 km).

Die für die horizontalen Transporte über die Isentropen notwendigen Temperatur und Druckprofile stammen aus Analysen des »United Kingdom Meteorological Office« (UKMO), die vertikalen diabatische Transporte werden mittels Strahlungstransferrechnungen bestimmt. Die meridionale Auflösung von SLIMCAT beträgt  $3,75^\circ$ , die latitudinale Auflösung  $2,5^\circ$ . Die in dieser Arbeit verwendeten SLIMCAT Ergebnisse wurden jedoch speziell für den Standort Ny-Ålesund extrahiert. Eine ausführliche Beschreibung von SLIMCAT findet sich zum Beispiel bei Chipperfield (1996).

Abbildung 7.9 zeigt einen Vergleich von SLIMCAT zu unseren Meßergebnissen. Dem Einfluß der nächtlichen Chlormonoxidaktivierung wurde Rechnung getragen, indem die SLIMCAT Daten um den in der Nacht modellierten Betrag verringert wurden. Da das Modell mit seinen 12 bis 24 unabhängigen Höhenschichten eine bessere Auflösung als das RAM besitzt, wurden die Daten mittels Gleichung (5.35) auf die RAM Höhenauflösung umgerechnet (die durchgezogene Linie).

Es zeigt sich, daß SLIMCAT die Chlormonoxid Konzentration insbesondere in der ersten Märzwoche stark unterschätzt. Ende März und Anfang April zeigt das Modell jedoch eine gute Übereinstimmung zu unseren Ergebnissen. In den SLIMCAT Daten läßt sich sehr gut das erste Zusammenbrechen des Polarwirbels um den Tag 75 erkennen. Im Trend ist die Übereinstimmung zwischen Messung und Modell aber recht gut. So zeigt die Chlormonoxidkonzentration zwischen 29. Februar und 11. März in beiden Datensätzen einen Rückgang auf ziemlich genau 67% des Ursprungswertes (entsprechend der eingezeichneten Trendlinien).

Die Auswirkung der Umrechnung auf die RAM Höhenauflösung zeigt sich in Abbildung 7.10, in der beispielhaft vier RAM Messungen den entsprechenden SLIMCAT Modelldaten des jeweiligen Tages gegenübergestellt wurden. Es zeigt sich, daß die Höhenposition von oberem und unterem Maximum

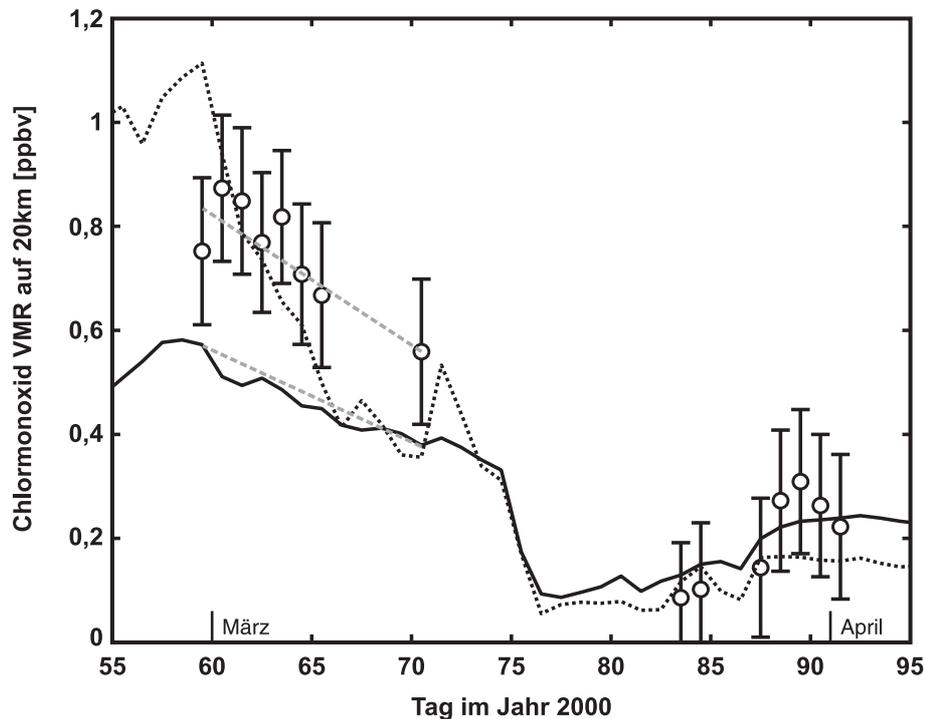


Abbildung 7.9: Die Ergebnisse des Chlormonoxid Radiometers in einer Höhe von 20 km im Vergleich zum SLIMCAT Modell. Die punktierte Linie entspricht den SLIMCAT Daten mit ihrer originalen Höhenauflösung von etwa 2 km; die durchgezogene Linie entspricht einem SLIMCAT, das auf die RAM Höhenauflösung umgerechnet wurde. Als gestrichelte, graue Linien sind zwei Tendenzlinien für die Zeit vom 29. Februar bis zum 11. März eingezeichnet.

zwischen RAM Messungen und umgerechneten SLIMCAT Daten sehr gut übereinstimmen. Die tatsächlich von SLIMCAT modellierten Maxima befinden sich jedoch in einer Höhe von etwa 19 beziehungsweise 30 km und werden durch die Faltung mit den Auflösungsfunktionen auf 21 beziehungsweise 40 km Höhe verschoben. Die Position des oberen Maximums der RAM Messungen ergibt sich direkt aus der Vorgabe des a priori Profiles. Durch Wahl eines anderen a priori Profiles kann dieses Maximum weiter nach unten verschoben werden, bei der Höhenauflösung des RAM würde dieses aber einen nicht abschätzbaren Einfluß auf das untere Maximum ergeben. Zudem zeigen Messungen und Modellrechnungen von Ricaud et al. (2000), daß das obere Maximum eher in 35 bis 40 km Höhe zu erwarten ist, als in 30 km.

Es bieten sich zwei mögliche Gründe für die Unterschätzung durch das Modell an. Entweder unterschätzt es das Chlormonoxid VMR im Maximum oder

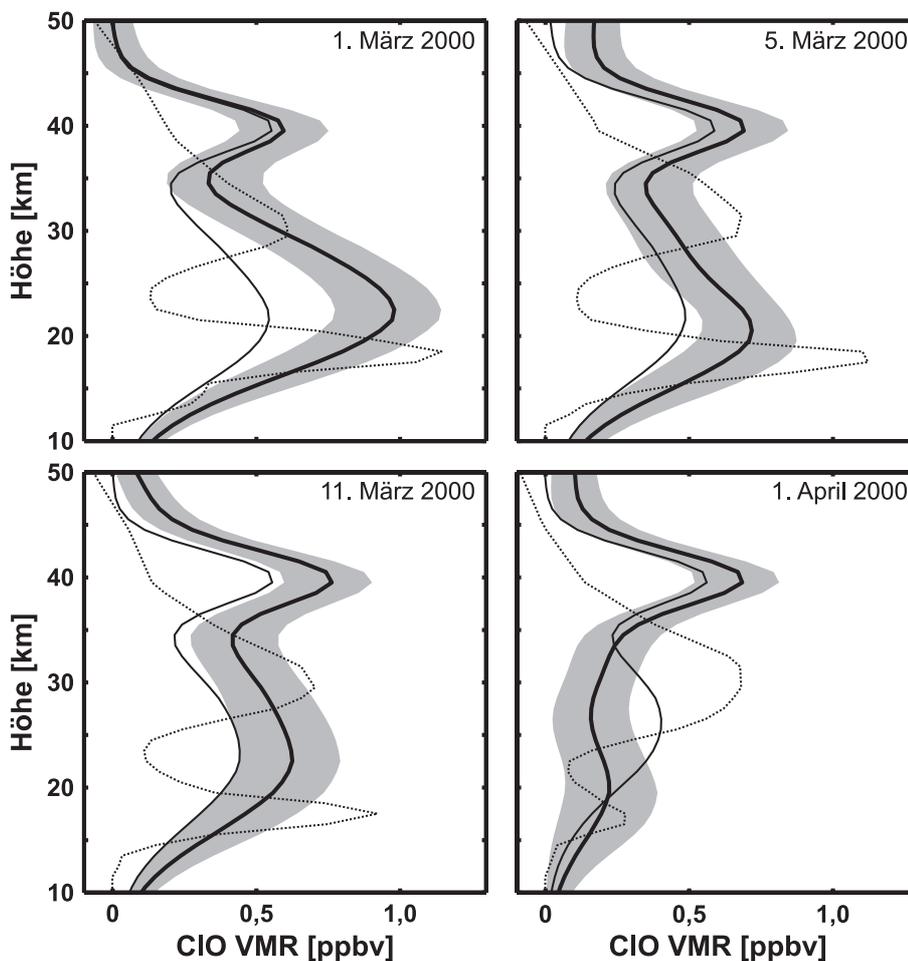


Abbildung 7.10: Ein detaillierter Vergleich von vier beispielhaft ausgewählten Messungen des RAM mit dem Modell SLIMCAT. Die RAM Messungen sind als dicke Linie mit Fehlerbereichen dargestellt; SLIMCAT in originaler Höhenauflösung wird als Punktlinie sowie in RAM Höhenauflösung als durchgezogene Linie dargestellt.

aber in der Höhenschicht zwischen seinem Maximum und 23 km – beides ergibt nach Anpassung auf die RAM Höhenauflösung das gleiche Ergebnis. Abbildung 7.11 zeigt, daß es auf der 550K Isentrope (in einer Höhe von etwa 23 km) nur bis zum Anfang des Februars polare Stratosphärenwolken und damit eine starke Chloraktivierung gegeben haben kann.

Stammt also das beobachtete Chlormonoxid tatsächlich aus einer Höhe von 18 bis 20 km, dann liegt der Fehler im Retrieval der RAM Daten begründet. Der Vergleich mit dem ASUR Instrument in Abbildung 7.8 (rechts) offeriert ebenfalls diese Lösung. Jedoch sind beide Messungen mit einem recht großen

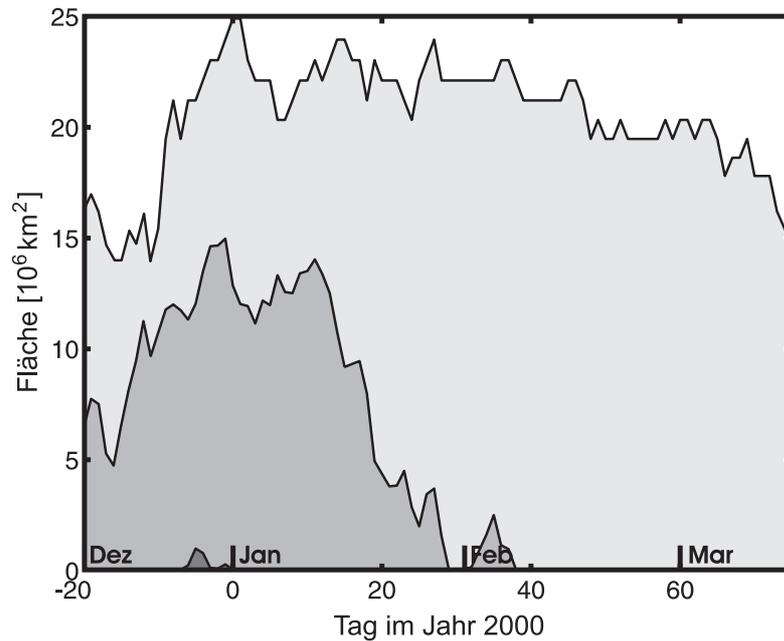


Abbildung 7.11: Die Fläche des Polarwirbels und der polaren Stratosphärenwolken auf der 550K Isentrope (circa 23 km), die sich möglicherweise gebildet haben. Die Fläche des Polarwirbels ist hellgrau dargestellt, die der PSCs vom Typ I (SAT, NAT oder STS) mittelgrau und die vom Typ II (Eis-PSCs) in dunkelgrau (nach Klein et al. (2001), Berechnet aus Daten des ECMWF).

Fehler behaftet und der Vergleich mit nur einem Profil eines anderen Meßgerätes reicht für eine endgültige Klärung nicht aus. Leider gibt es für den Winter 1999/2000 keine weiteren Vergleiche mit höhen aufgelösten Instrumenten.

Zudem zeigen Untersuchungen von Santee et al. (2000) und Kleinböhl et al. (2001), daß es aufgrund der tiefen Temperaturen im Winter 1999/2000 zu einer deutlichen Denitrifizierung des Polarwirbels gekommen ist. Santee et al. haben eine  $\text{HNO}_3$  Abnahme von etwa 20% in 20 km Höhe festgestellt; Kleinböhl et al. haben auf einem  $\text{N}_2\text{O}$  Tracer-Level zwischen 23 und 20 km eine Abnahme von etwa 40% bestimmt (jeweils ausgehend von der Formierung des Wirbels Anfang Dezember 1999 bis zum Anfang des März 2000). Diese könnte in 23 km Höhe die Rückkehr der aktiven Chlorverbindungen in ihre Reservoirgase bis in den späten März hinein verzögert haben und so für die von uns gemessenen Chlormonoxid Werte verantwortlich sein.

## 7.7 Der Winter 2000 im Vergleich zum CLONO<sub>2</sub> Instrument

Das einzige andere Meßgerät, das im Rahmen der SOLVE-THESEO 2000 Kampagne Chlormonoxid im Beobachtungszeitraum des RAM gemessen hat ist das CLONO<sub>2</sub> in-situ Instrument der Harvard Universität. Die der Atmosphäre vor dem Flugzeug entnommene ClO Luftprobe wird mit NO versetzt und in einem Siliziumgitter sehr kurz auf 520K erhitzt; nach der Pyrolyse-reaktion bleiben NO<sub>2</sub> und atomares Chlor zurück. Von letzterem wird mittels seiner UV Resonanzfluoreszenz bei 118,9nm die Konzentration bestimmt. Gemäß Stimpfle et al. (2001) beträgt die Meßgenauigkeit des Gerätes 17%, beziehungsweise 3 pptv.

Das CLONO<sub>2</sub> Instrument befindet sich an Bord der ER-2 der NASA; einer zivilen Variante des U-2 Aufklärungsflugzeuges, welches mit zahlreichen Meßgeräten bestückt eine maximale Flughöhe von 20km erreichen kann. An zwei Tagen, dem 5. und 12. März 2000 befand sich die ER-2 in unmittelbarer Nähe von Ny-Ålesund. Die RAM Messungen im Vergleich zu den Ergebnissen des CLONO<sub>2</sub> Instruments sind in Abbildung 7.12 dargestellt.

Die ER-2 befand sich während der Messungen in einem Radius von 250 km um Ny-Ålesund und flog jeweils in einer Höhe zwischen 18 und 19 km. Beide Messungen fanden zwischen 14 Uhr und 14 Uhr 30 statt; zu einer Zeit in der aktives Chlor in der unteren Stratosphäre vorhanden sein sollte.

Eine in-situ Messung kann nicht quantitativ mit einer fernerkundlichen, höhen aufgelösten Messung verglichen werden. Zudem besitzt das RAM eine viel gröbere räumliche Auflösung als das an einem definierten Ort messende CLONO<sub>2</sub> Instrument. Dabei würde jegliche schmale Profilschärfe durch eine Umrechnung auf die RAM Höhenauflösung stark geglättet werden – dieser Effekt erklärt auch, warum das RAM grundsätzlich geringere Werte mißt als das CLONO<sub>2</sub> Instrument. Doch auch so lassen sich einige Aussagen aus dem Vergleich der beiden Geräte treffen. Sowohl das RAM als auch das CLONO<sub>2</sub> zeigen zwischen dem 5. und dem 11. beziehungsweise 12. März (Tag 65 und Tag 71 beziehungsweise 71) eine Abnahme des Chlormonoxides. Beim direkten Vergleich zwischen den RAM Daten vom 5. und 11. März ergibt sich eine ClO Abnahme von 25%, dem gegenüber zeigen die CLONO<sub>2</sub> Daten vom 5. und 12. März eine Abnahme von nur 10%. Aufgrund der Fehler in beiden Messun-

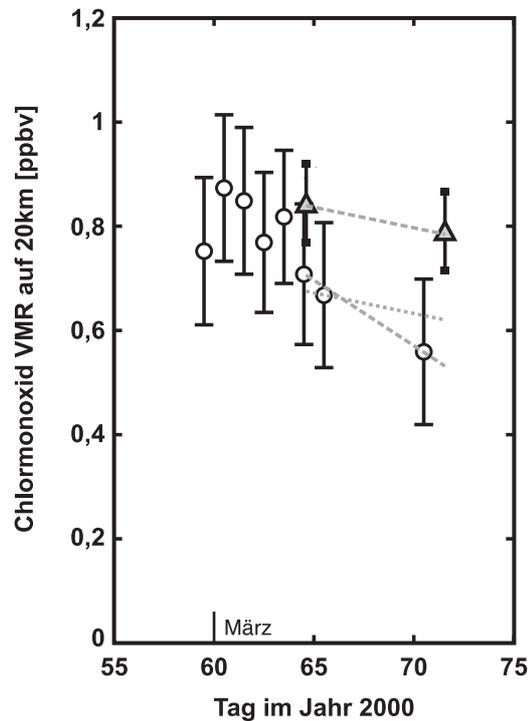


Abbildung 7.12: Die RAM Messungen von Anfang März 2000 sowie als zwei graue Dreiecke mit Fehlerbereich die CIO Messungen des Harvard CIONO<sub>2</sub> Instruments vom 5. und 12. März. Die CIONO<sub>2</sub> Messungen fanden auf Flügen der ER-2 zwischen 18 und 19 km statt; die RAM Messungen wurden daher auf einer Höhenschicht von 18,5 km berechnet. In gestrichelt grau sind zwei Tendlinien für den beobachteten Chlormonoxidabbau eingezeichnet. Die gepunktete Trendlinie entspricht in ihrer Steigung dem mit dem CIONO<sub>2</sub> Instrument bestimmten CIO Abbau.

gen ist letztendlich aber nur ein qualitativer Vergleich der Ergebnisse zulässig. Dieses verdeutlicht auch die gepunktete Trendlinie, welche die Steigung des Harvard Gerätes besitzt und sich gut in die RAM Daten einpassen lässt.

## 7.8 Messung des Chlormonoxid Tagesganges

Aufgrund der ausgezeichneten Wetterbedingungen des Jahres 2000 ergab sich ab Ende Februar über sieben Tage hinweg eine nahezu ununterbrochene Reihe von insgesamt 115 Messungen. Erstmals seit der Installation des Chlormonoxid Radiometers im Jahr 1994 ergab sich damit die Möglichkeit der Aufzeich-

nung von hochaufgelösten Tagesgängen. Jede dieser Messungen erstreckte sich über einen Zeitraum von 75 Minuten; jeweils gefolgt von einer Messung des Ozonradiometers von knapp 15 Minuten. Aufgrund der Spiegelstellzeiten und der Verrechnung von Referenz- und Signalstrahl ergibt sich jedoch für jede Messung eine Integrationszeit von nur 20 Minuten. Trotz dieser kurzen Zeit haben die Daten aber eine hohe Qualität, so daß es möglich wurde jede Einzelmessung auszuwerten. Durch Bildung einer »Messung Minus Nacht« Differenz wurde die Gerätebaseline minimiert, dabei fanden die gleichen mittleren Nachtmessungen Anwendung wie auch schon bei der Berechnung der Tagesmittelwerte. Das Ergebnis dieser Auswertung findet sich in Abbildung 7.13. Dabei wurden ausnahmslos alle 115 erzeugten Chlormonoxidprofile übernommen – üblicherweise findet sonst eine Auswahl der Spektren statt, bei der nur jene integriert beziehungsweise invertiert werden, die eine gleichmäßige Baseline zeigen. So kommt es, daß in der Nacht einige der Profile auch Über- und Unterschwinger und damit fehlerhafte Mischungsverhältnisse von  $\pm 0,3$  ppbv zeigen können. Sie ergeben sich in der OEM aufgrund einer schlechteren Anpassung von Vorwärts- an Meßspektrum.

In der unteren Stratosphäre um 20km sollten die sich ergebenden Tagesgänge insgesamt gut abgebildet werden. In der oberen Stratosphäre werden jedoch aufgrund des verwendeten a priori Profiles auch in der Nacht sehr oft zu hohe Chlormonoxid Konzentrationen bestimmt. Alles in allem sind die Nachtzeiten bei Verwendung von Messung-Minus-Nacht Spektren ohnehin nur mit Vorsicht zu interpretieren.

Abbildung 7.14 zeigt als Konturgrafik den Tagesgang des 2. März 2000. Die in das mittlere Spektrum des Tages eingehenden Messungen sind durch dickere weiße Punkte am Oberrand der Grafik markiert. Es stellt sich die Frage, wie vertrauenswürdig die Einzelmessungen in Hinblick auf die bisher durchgeführten Tagesmittelwerte sind. Im rechten Feld ist dazu ein Vergleich abgebildet. Das durchgezogene Profil entspricht einem mittleren Tagesprofil; dabei wurden die Spektren der fünf markierten Messungen integriert, mit einer mittleren Nachtmessung verrechnet und anschließend invertiert. Es entspricht damit genau dem in Abschnitt 7.4 für den 2. März angegebenen Tagesmittelwert. Das gepunktete Profil ist der Mittelwert der fünf markierten Profile im linken Felde. Es zeigt sich, daß es in einem Höhenbereich um 20 km eine sehr gute Übereinstimmung zwischen beiden Vorgehensweisen gibt. Da bei den zum Vergleich herangezogenen Spektren das Verfahren der Anpassung von Nacht- an Tag-

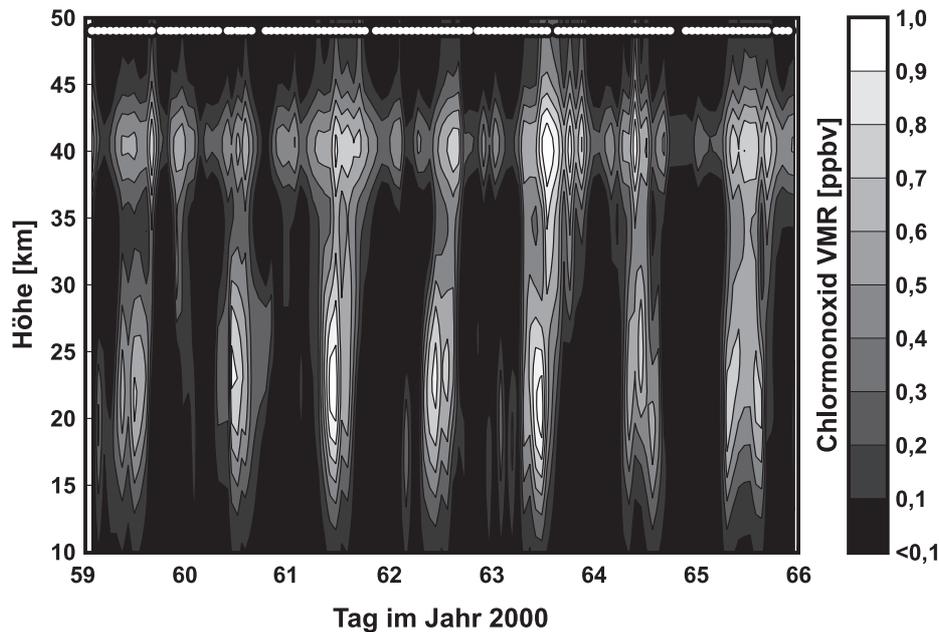


Abbildung 7.13: Die Konzentration von Chlormonoxid der Tage vom 29. Februar (Tag 59) bis zum 6. März 2000 (Tag 65) für die Höhen von 10 bis 50km. Im Beobachtungszeitraum fanden insgesamt 115 Messungen statt (markiert durch weiße Punkt am Oberrand der Grafik). Sie wurden jeweils mit einer passenden mittleren Nachtmessung als »Messung Minus Nacht« Spektrum verrechnet und anschließend invertiert.

spektren durch Skalierung, Slope und Bias verwendet wurde, ist dieses Ergebnis auch ein Indiz dafür, daß diese Methode keinen merklichen Einfluß auf das Profil nimmt. Andernfalls sollten die fünf einzeln angepaßten Spektren im Mittel ein merklich anderes Ergebnis liefern als das angepaßte einzelne Tagespektrum.

Anfang März geht die Sonne in einer Höhe von 20km gegen 6 Uhr 30 auf und gegen 16 Uhr 20 unter (bei einem SZA von  $94,5^\circ$  am Erdboden); der Sonnenhöchststand wird um 11 Uhr 15 erreicht<sup>2</sup>. Der Anstieg des Chlormonoxids geschieht innerhalb von 2,5 Stunden nach Sonnenaufgang, dabei wird der Maximalwert des Tages mit 0,9ppbv in einer Höhe von 20km erreicht. Die Chloraktivierung in einer Höhe von 20km findet damit zwischen einem Sonnen-Zenitwinkel von  $90^\circ$  und  $95^\circ$  statt (beziehungsweise zwischen einem Sonnen-Zenitwinkel von etwa  $85^\circ$  bis  $90^\circ$ , bezogen auf einen Beobachter in 20km Höhe über dem Erdboden). Dieses Verhalten zeigt sich auch in den in

<sup>2</sup> Alle RAM Zeiten sind UTC Zeiten.

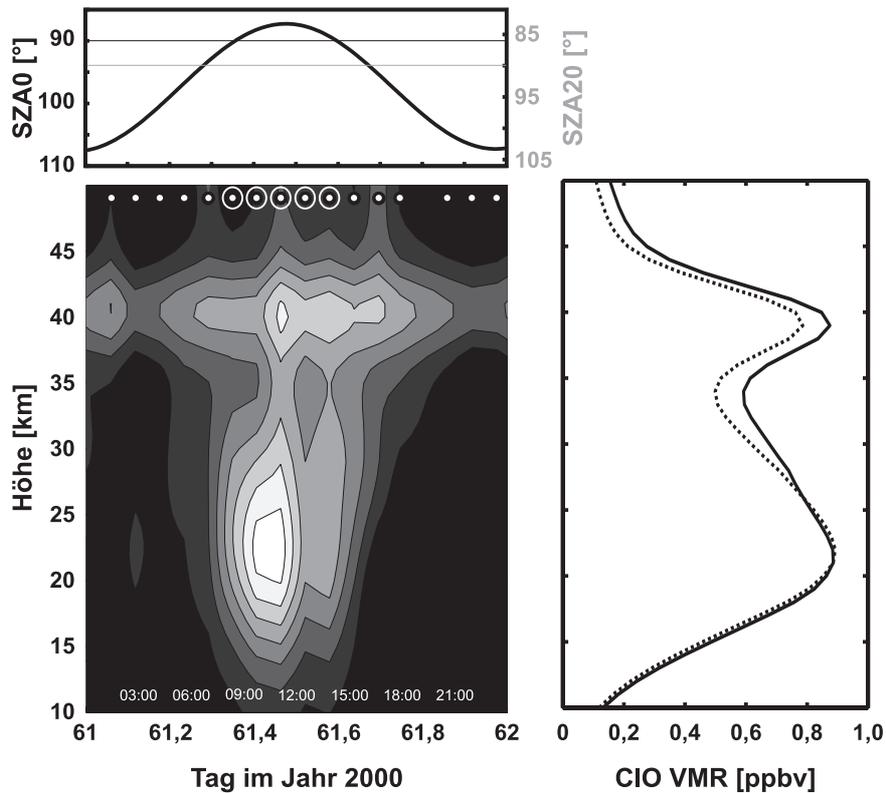


Abbildung 7.14: Links: Der Chlormonoxid Tagesgang vom 2. März 2000 als Ausschnittvergrößerung der vorherigen Abbildung; dort findet sich auch die Farbkodierung der ClO Konzentrationen. Die Zeitpunkte der Messungen sind mit weißen Punkten am Oberrand der Grafik hervorgehoben. In dem Feld über dem Tagesgang befindet sich der zur Uhrzeit gehörende Sonnen-Zenitwinkel des Tages mit jeweils einer Ordinate für den Erdboden (links) und 20km Beobachterhöhe (rechts in grau), jeweils mit der zugehörigen  $90^\circ$  Horizontlinie. Rechts: Das Profil der Chlormonoxid Tagesmittelwerte für den 2. März; die durchgezogene Linie ist das invertierte mittlere Spektrum von fünf ausgewählten Messungen, die gepunktete Linie der Mittelwert von fünf (im linken Feld hervorgehobenen) Profilen.

Abschnitt 2.4 zeigten Modellrechnungen durch von König (2000). In Abbildung 2.2, rechts unten werden ebenfalls innerhalb eines Winkelbereiches von etwa  $90^\circ$  bis  $95^\circ$  an die 90% des vorhandenen Chlormonoxid aus seinem Dimer in den aktiven Zustand überführt.

Die Chlormonoxidkonzentration bleibt bis etwa 15 Uhr 30 (respektive einem Sonnen-Zenitwinkel von etwa  $89^\circ$  in 20km Höhe) auf einem hohem Niveau

von bis zu 0,6ppbv um dann mit Einbruch der Dämmerung innerhalb einer Stunde auf das nächtliche Grundniveau abzusinken.

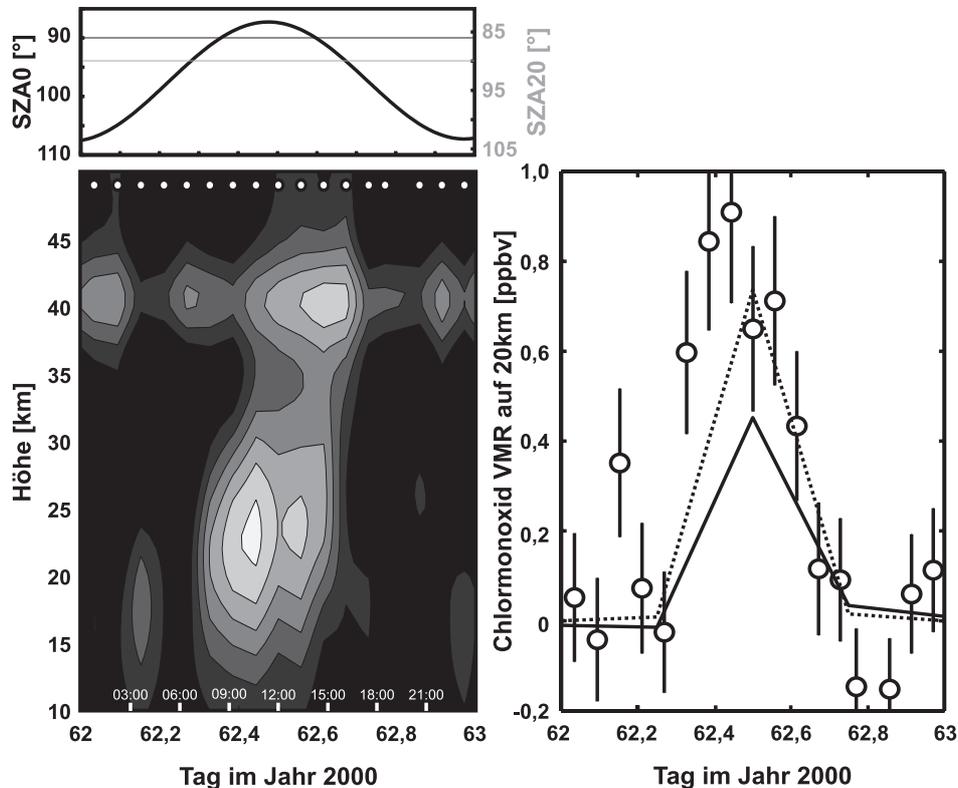


Abbildung 7.15: Links: Der Chlormonoxid Tagesgang vom 3. März 2000 als Ausschnittvergrößerung von Abbildung 7.13; dort findet sich auch die Farbkodierung der ClO Konzentrationen. Die Zeitpunkte der Messungen sind mit weißen Punkten am Oberrand der Grafik hervorgehoben. In dem Feld über dem Tagesgang befindet sich der zur Uhrzeit gehörende Sonnen-Zenitwinkel des Tages mit jeweils einer Ordinate für den Erdboden (links) und 20km Beobachterhöhe (rechts in grau), jeweils mit der zugehörigen 90° Horizontlinie. Rechts: Der Tagesgang in einer Höhe von 20km im Vergleich zum Modell SLIMCAT. Die punktierte Linie entspricht den SLIMCAT Daten mit ihrer originalen Höhenauflösung von etwa 2 km; die durchgezogene Linie entspricht SLIMCAT, das auf die RAM Höhenauflösung umgerechnet wurde. SLIMCAT Datenpunkte existieren für jeweils 6, 12, 18 und 24 Uhr.

Abbildung 7.15 zeigt detailliert den Tagesgang des 3. März 2000 als Konturgrafik. Wie alle anderen Tage auch und insbesondere die vorhergehende Detailabbildung, zeigt sich auch hier das gleiche Verhalten von Chloraktivierung und -deaktivierung. Im rechten Feld ist dazu der Tagesgang in einer Höhe von

20km im Vergleich zum Modell SLIMCAT dargestellt. SLIMCAT Daten existieren jeweils für 0, 6, 12 und 18 Uhr und wurden zum besseren Vergleich ebenfalls in eine Tag-minus-Nacht Differenz umgerechnet. Das Modell zeigt alles in allem eine gute Übereinstimmung mit dem beobachteten Verlauf der Chloraktivierung. Gegen 6 und 18 Uhr existiert beim Modell kein Chlormonoxid, was durch die Messungen bestätigt wird. Der Meßwert von etwa 3,5 ppbv um 4 Uhr Morgens ist ein Überschwinger im Profil, als Ergebnis einer schlecht angepaßten Vorwärtsrechnung. Wie schon in Abschnitt 7.6 dargestellt zeigt auch in dieser detaillierteren Betrachtung SLIMCAT ein geringeres Chlormonoxid VMR als die RAM Messungen. Dabei gibt es wieder eine erstaunlich gute Übereinstimmung zwischen den RAM Messungen und dem SLIMCAT Daten in ihrer originalen Höhenauflösung.

Abbildung 7.16 zeigt einen Tagesgang, der sowohl über die Höhenschichten von 20 bis 25 km, als auch über alle sieben Tage (von Tag 59 bis 65) gemittelt wurde. Viel besser als in den Abbildungen 7.13 bis 7.15 läßt sich die Chloraktivierung erkennen, die etwa gegen 6 Uhr, noch vor dem eigentlichen Sonnenaufgang beginnt und gegen 8 Uhr 30 fast abgeschlossen ist. Das Maximum der Chlormonoxidkonzentration wird mit knapp unter 0,9 ppbv kurz vor dem Sonnenhöchststand gegen 11 Uhr 30 erreicht. Schon bald nach 14 Uhr beginnt die Chlordeaktivierung. Sie dauert fast eine Stunde länger als die Aktivierung und ist gegen 17 Uhr 30 abgeschlossen. Sonnenuntergang ist, wie weiter oben beschrieben, gegen 16 Uhr 30. Auch hier spielt sich die Chloraktivierung und -deaktivierung in einem Sonnen Zenitbereich von etwa  $5^\circ$  ab. Ganz deutlich zeigt sich, daß die Vorgaben für die Nachtmessung (ein Stunde vor Sonnenaufgang und drei Stunden nach Sonnenuntergang) mehr als ausreichend gewählt wurden. Die negativen Werte in der Nacht ergeben sich aufgrund von zum Teil schlechten Anpassungen der Vorwärts- an die Meßspektren sowie insbesondere durch die Bildung der Tag-minus-Nacht Spektren.

Interessant ist auch das Verhalten der Chlormonoxidkonzentration des oberen Maximums in einer Höhe von 40 km. In Abbildung 7.17 ist dazu der auf ein gemeinsames Zeitgitter umgerechnete mittlere Tagesgang für sechs der sieben Tage im Höhenbereich von 38 bis 42 km dargestellt. Der 63. Tag wurde ausgeschlossen, da er am Nachmittag einen starken Überschwinger besitzt, der sich auf ein schlecht angepaßtes Vorwärtsspektrum im Retrieval zurückführen läßt. Für einen besseren Vergleich zu Abbildung 7.18 wurde vom Ergebnis das VMR des mittleren Tagesganges abgezogen (linke Ordinate).

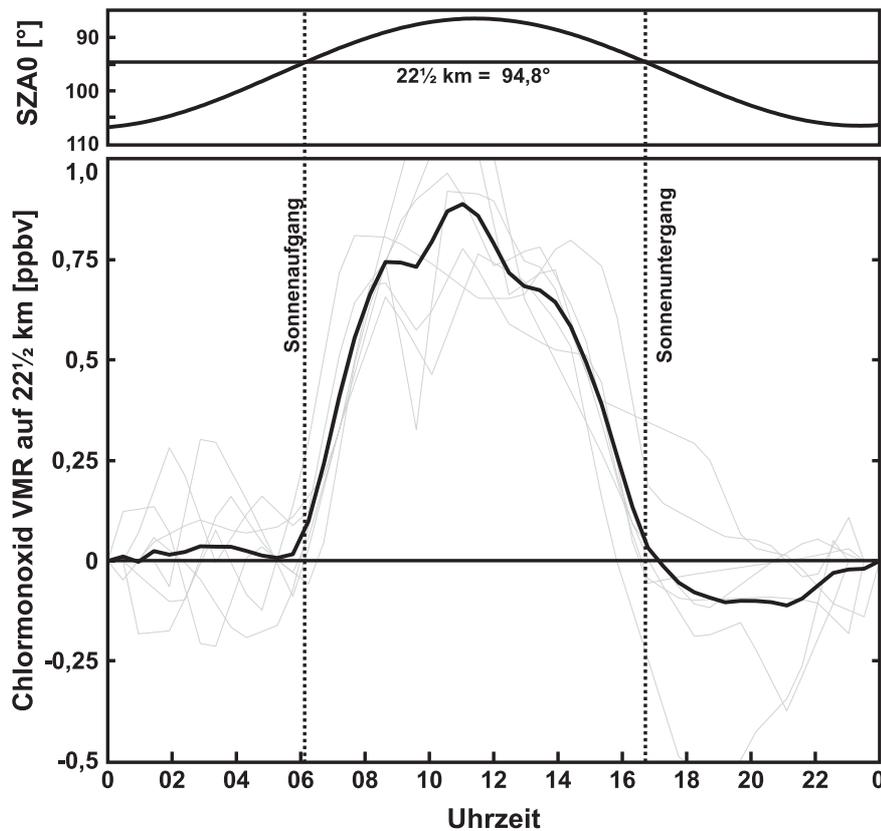


Abbildung 7.16: Ein aus den sieben Tagesgängen bestimmter mittlerer Tagesgang; gemittelt über einen Höhenbereich von 20 bis 25 km. Die sieben einzelnen Tage sind als dünne graue Linien unterlegt. Über der Abbildung befindet sich ein Diagramm mit dem Sonnen Zenitwinkel des Tages. Die Zeiten für den Sonnenaufgangs und Sonnenuntergangs sind markiert.

Grundsätzlich zeigt der Tagesgang in 20 und 40 km Höhe das gleiche Verhalten. Der Sonnenaufgang und Sonnenuntergang in 40 km geschieht bei einem Sonnen Zenitwinkel von etwa  $96,5^\circ$  am Boden – das entspricht etwa 5 Uhr 30. Während die Aktivierung in 20 km aber sehr schnell vor sich geht, benötigt sie in 40 km Höhe mit fünf Stunden das Doppelte an Zeit. Der Maximalwert wird jedoch ebenfalls beim Sonnenhöchststand erreicht. In Abbildung 7.13 scheint es, als ob das Maximum der Aktivierung in den Nachmittag auf etwa 15 Uhr verschoben ist. Tatsächlich bleibt die Aktivierung länger erhalten, so daß um 16 Uhr noch eine sehr hohe ClO Konzentration vorhanden ist. Die Deaktivierung geschieht dann innerhalb von 2 Stunden und benötigt damit genau so lange wie in 20 km Höhe.

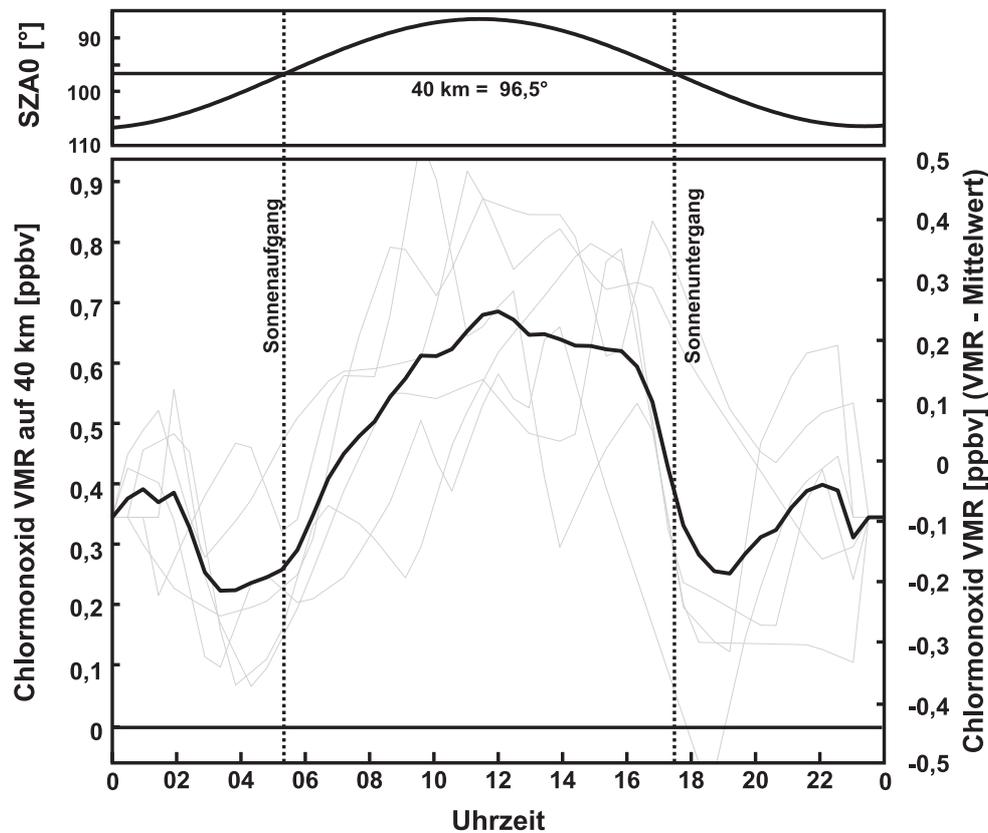


Abbildung 7.17: Ein aus sechs Tagen berechneter mittlerer Tagesgang; gemittelt über einen Höhenbereich von 38 bis 42 km. Tag 63 wurden wegen der großen nachmittäglichen Überschwinger nicht in die Mittelung übernommen. Die sechs einzelnen Tage sind als dünne graue Linien unterlegt. Die linke Sekundärachse zeigt das absolute VMR. Zum besseren Vergleich mit Abbildung 7.18 wurde auf der rechten Ordinate zusätzlich die Variation abzüglich des Tagesmittelwertes aufgetragen. Über der Abbildung befindet sich ein Diagramm mit dem Sonnen Zenitwinkel des Tages. Die Zeiten für den Sonnenaufgangs und Sonnenuntergangs sind markiert.

Im Vergleich zum RAM Tagesgang befindet sich in 7.18 ein mit dem MLS Satelliteninstrument gemessener Tagesgang, sowie mehrere photochemische Modellrechnungen nach Ricaud et al. (2000). Es handelt sich zwar um Messungen zwischen  $40^\circ$  und  $50^\circ$  Nord, wegen des fehlenden Einflusses der polaren Stratosphärenwolken (beziehungsweise des polaren Vortex) in diesen Höhenschichten sollten unsere Ergebnisse dennoch vergleichbar sein. Die RAM Messung ist aufgrund der Höhenauflösung jedoch in etwa eine Superposition der MLS Messungen von 35 und 41 km (wobei die Auflösungsfunktionen des

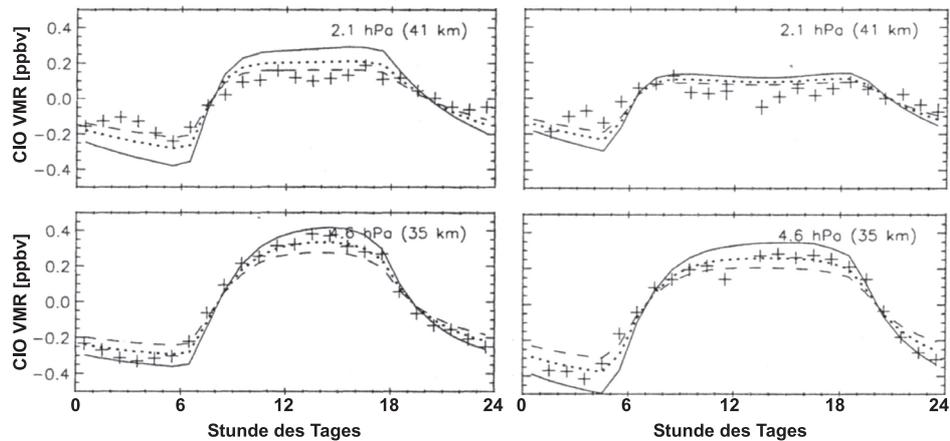


Abbildung 7.18: Der Tagesgang von Chlormonoxid in einer Höhe von 35 beziehungsweise 41 km nach Ricaud et al. (2000). Links der Monat Februar und rechts der Monat Mai. Die UARS/MLS Messungen zwischen  $40^\circ$  und  $50^\circ$  Nord als Kreuze, alle anderen Linien sind Tagesgänge eines 0d photochemischen Modells mit verschiedenen Werten für den Steuerungsparameter. Aufgetragen sind jeweils die stündlichen Werte abzüglich des Tagesmittelwertes.

RAM die 35 km Höhenschicht stärker bewerten als die in 41 km). Zudem befinden wir uns mit unserer März-Messung zwischen der Februar und Mai Messung in der Abbildung.

Ricauds Untersuchungen zeigen – die unterschiedlichen Sonnenaufgangs- und Sonnenuntergangszeiten mit einbezogen – eine gute Übereinstimmung mit unseren Messungen. Lediglich die von ihm langsamer beobachtete Chlormonoxidabnahme nach Sonnenuntergang können wir in unseren Ergebnissen nicht wiedererkennen. In absoluten Zahlen bestimmt Ricaud eine Chloraktivierung (Maximalwert Minus Minimalwert) von etwa 0,7 ppbv (35 km) und 0,4 ppbv (41 km) im Februar sowie 0,7 ppbv (35 km) und 0,3 ppbv (41 km) im Mai. Wir liegen mit unseren beobachteten 0,4 ppbv im Rahmen der Fehler ziemlich gut dazwischen.

In der oberen Stratosphäre ist nicht mehr der Chlormonoxid-Dimer das Nachtreservoir, sondern die Gase  $\text{ClONO}_2$  und  $\text{HOCl}$ . Abbildung 7.19 zeigt dazu eine Modellrechnung, die den Übergang der Reservoirgase in Chlormonoxid zeigt. Während in 41 km Höhe  $\text{ClONO}_2$  entscheidend ist, hat in 35 km Höhe  $\text{HOCl}$  den größeren Einfluß. In absoluten Zahlen und im Rahmen unserer Fehler stimmt die von uns beobachtete Chloraktivierung in 40 km Höhe

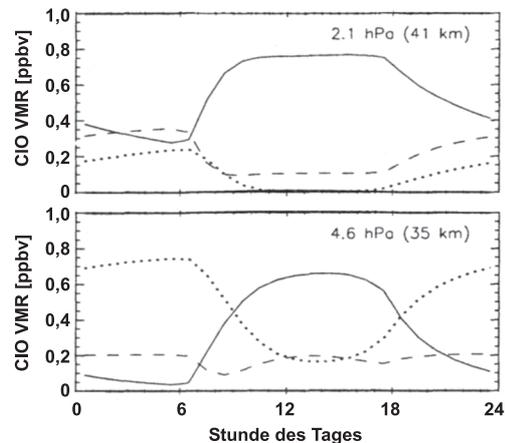


Abbildung 7.19: Eine 0d photochemische Modellrechnung für den Monat Februar nach Ricaud et al. (2000) für 35 und 41 km Höhe. Die durchgezogene Linie entspricht dem Chlormonoxid VMR, die Punktlinie ist  $\text{ClONO}_2$  und die Strichlinie  $\text{HOCl}$ . Bei einsetzendem Sonnenlicht würde ein Teil des Tages ClO durch Photolyse in atomares Chlor umgesetzt werden. Als Folge würde über Mittag die Chlormonoxid Konzentration wieder absinken, so daß sich eine Struktur mit zwei Maxima ausbilden würde.

von etwa 0,2 ppbv in der Nacht auf etwa 0,75 ppbv am Tage sehr gut mit obiger Modellrechnung überein (siehe dazu Abbildung 7.17), die rechte Ordinate).

Bei Sonnenaufgang (in 40 km Höhe ab Anfang/Mitte Februar) kann ein Teil des am Tage vorhandenen Chlormonoxids in atomares Chlor photolysiert werden. In Folge dessen sinkt über Mittag die ClO Konzentration wieder etwas ab. Dieses führt zu einer Struktur, bei der ein Chlormonoxid Maximum am Vormittag, und eines am Nachmittag kurz vor der Deaktivierung beobachtet werden kann (erkennbar ist dieses zum Beispiel in den MLS Daten in Abbildung 7.18 in 41 km Höhe). Ohne diesen Effekt genau zu quantifizieren läßt er sich in Abbildung 7.13 zum Beispiel am Tag 59 oder Tag 64 ebenfalls beobachten.

## 7.9 Chloraktivierung im Winter 2001

Unsere Messungen mit dem Chlormonoxid Radiometer beginnen zwischen Ende Januar und Mitte Februar eines Jahres. Technische Probleme verzögerten den Start der Messungen im Jahr 2000 jedoch auf Anfang März.

In Abbildung 7.20 ist der Polarwirbel für den Winter 2000/2001 dargestellt.

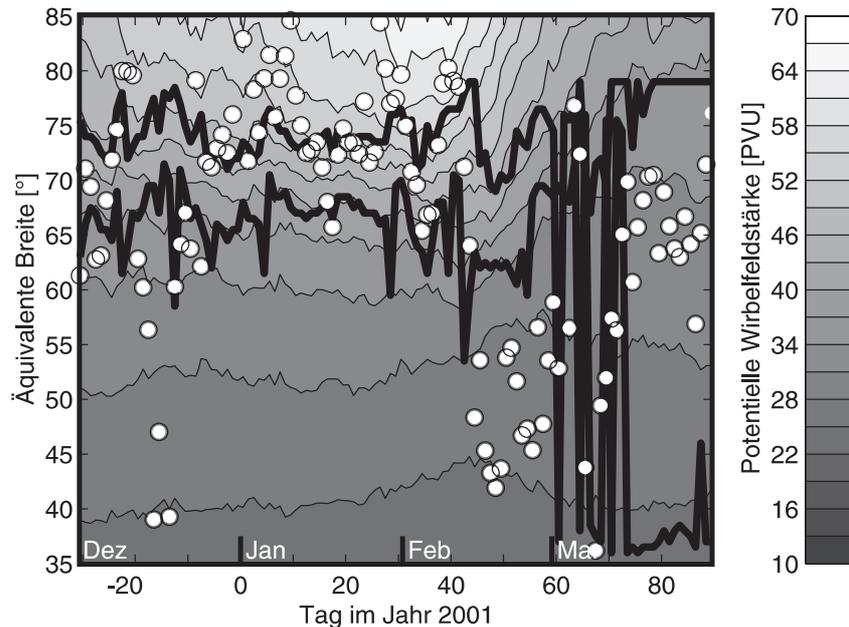


Abbildung 7.20: Der nördliche Polarwirbel für den Winter 2000/2001, dargestellt durch die PV auf der äquivalenten Breite. Die weißen Punkte entsprechen dem Standort Ny-Ålesund, die dicken Linien sind der innere und äußere Wirbelrand. Der Wirbel war in diesem Winter sehr variabel und wie der Gradient zeigt auch nicht sonderlich stark ausgeprägt. Schon ab Mitte Februar lag Ny-Ålesund nicht mehr innerhalb des vom Wirbel überdeckten Bereiches, gegen Ende Februar begann der Wirbel stark zu fluktuieren und brach damit auseinander (Berechnet aus Daten des ECMWF).

Man erkennt, daß er durchweg sehr variabel war und schon sehr früh auseinander brach. Ny-Ålesund befand sich oftmals im Randbereich oder außerhalb des vom Wirbel überdeckten Gebietes; ab dem 14. Februar lag Ny-Ålesund nur noch außerhalb des Polarwirbels. Ohne die kalten Temperaturen im Wirbelinneren die zur Bildung von PSCs führen, kann es keinen heterogenen Chlormonoxid Dimer-Zyklus und damit kein meßbares Chlormonoxid geben.

Aus dem Sonnenstandsdiagramm in Anhang F läßt sich ablesen, daß in Ny-Ålesund erst ab Mitte Februar die Polarnacht endet. Ab dieser Zeit ist in der unteren Stratosphäre mit einer durch Sonnenlicht hervorgerufenen Chloraktivierung zu rechnen. Zudem benötigen wir, wie in Abschnitt 7.1 beschrieben, Tag- und Nachtmessungen für die Eliminierung der Gerätebaseline.

Die verschiedenen Einflüssen haben dazu geführt, daß im Jahr 2001 keine erfolgreichen Messungen durchgeführt werden konnten – es gab keine Über-

schncheidung zwischen Tagen mit Sonnenlicht und Tagen innerhalb des Polarwirbels.

## 7.10 Fazit zu diesem Kapitel

Im Rahmen dieser Arbeit wurden, wie in Abschnitt 6.2 beschrieben, zahlreiche Veränderungen am Chlormonoxid Radiometer vorgenommen, die zu einer deutlich stabileren Baseline führten. In Verbindung mit einer neu implementierten Software für die Auswertung ergaben sich für das Jahr 2000 insgesamt 15 Chlormonoxid Messungen als Tagesmittelwerte. Die gezeigte Chloraktivierung wurde anhand des vom RAM beobachteten Ozonabbaus diskutiert sowie mit dem flugzeuggetragenen Radiometer ASUR, dem chemischen Transportmodell SLIMCAT und dem ClONO<sub>2</sub> in-situ Instrument verglichen. Die Ergebnisse des RAM zeigten dabei eine gute quantitative Übereinstimmung, wenn auch nicht abschließend geklärt werden konnte warum SLIMCAT deutlich weniger ClO modelliert als wir gemessen haben.

Neben der Berechnung von Tagesmittelwerten wurde erstmals auch eine Analyse hochaufgelöster Chlormonoxid Tagesgänge durchgeführt. Die Ergebnisse entsprechen anderen Beobachtungen und Modellierungen für 20 und 40km Höhe.

Für das Jahr 2001 konnten aufgrund des frühzeitigen Zusammenbrechens des Polarwirbels keine Chlormonoxid Messungen durchgeführt werden.

Die in diesem Kapitel vorgestellten Ergebnisse wurden in Auszügen bei Klein et al. (2001) und Lindner et al. (2001) publiziert.

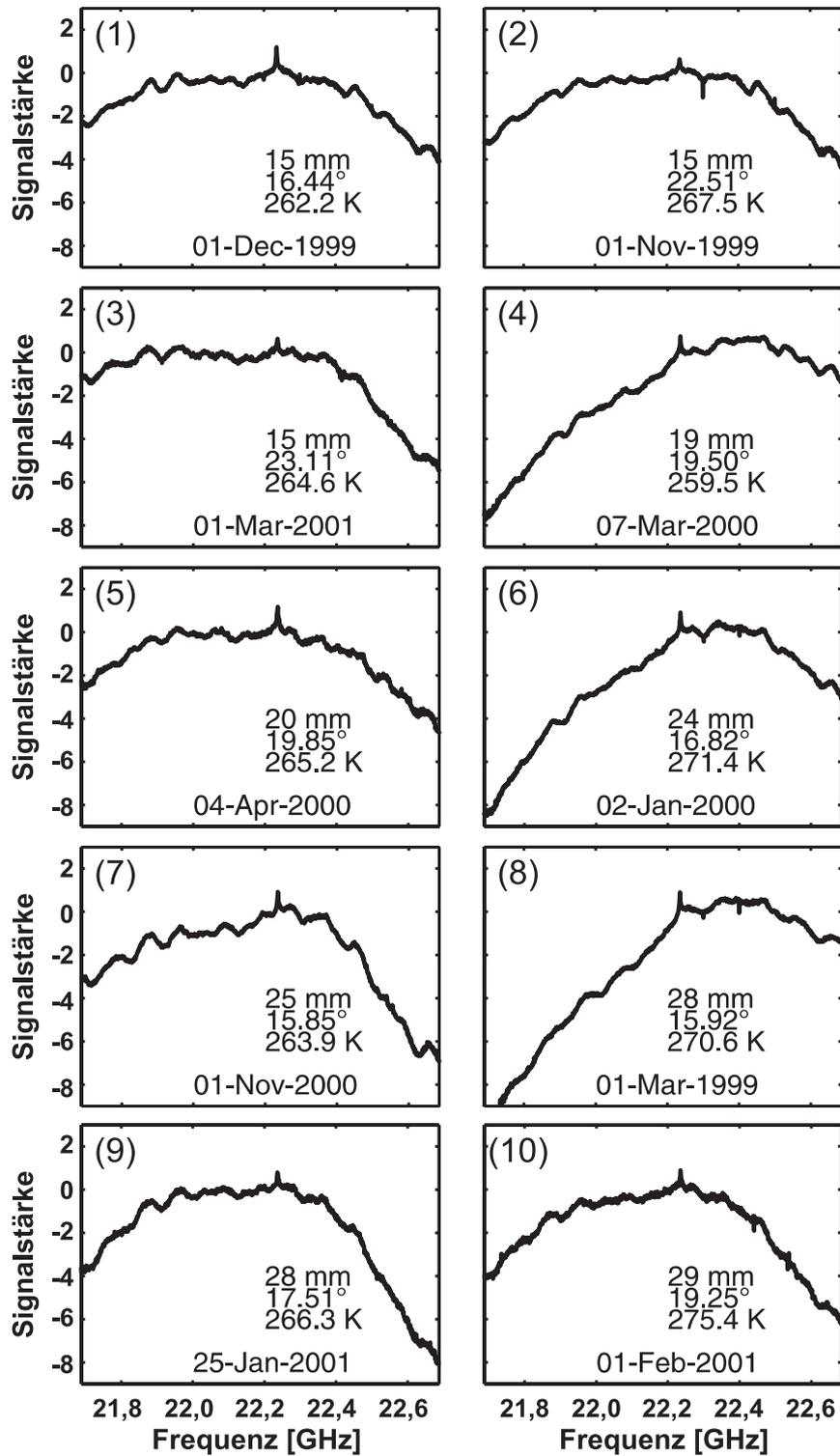


## **8 Messungen stratosphärischen Wasserdampfes**

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen um ein Frontend zur Beobachtung der 22 GHz Wasserdampflinie erweitert. Die Auswertung der mit der Referenzstrahl Methode gewonnenen Daten gestaltete jedoch schwierig. Der starke Abfall des Wasserdampf Volumenmischungsverhältnisses mit der Höhe sowie die starke Variabilität in der unteren Troposphäre bedingen ein kompliziertes Retrieval. Im folgenden soll zuerst die Referenzstrahl Auswertung, mit den sich ergebenden Schwierigkeiten dargestellt werden. Danach folgt die Beschreibung der Auswertung von Meßdaten, die nach der Totalpower Methode gewonnen wurden. Abschließend werden die Totalpower Spektren noch auf die vorhandenen Stehwellen untersucht.

### **8.1 Wasserdampfmessungen mit dem Referenzstrahl Verfahren**

Die Aufbereitung der Wasserdampf Spektren unterscheidet sich grundlegend von der in Abschnitt 7.1 beschriebenen Vorgehensweise bei den Chlormonoxid Spektren. Während bei letzteren eine Umrechnung auf einen gemeinsamen Winkel – üblicherweise Zenit – mittels eines einfachen zwei-Schichten Modelles stattfinden kann, ist dies beim Wasserdampf aufgrund der stark von der Höhe abhängigen Verteilung nicht möglich. Da im aktuell verwendeten Retrieval aber keine kalibrierten Spektren vorausgesetzt werden, können sie einfach aufaddiert werden. Jedoch dürfen nur Spektren mit ähnlichen Beobachtungswinkeln zusammengefaßt werden. Für jeden Tag wird dazu eine Statistik über alle vorgekommenen Signalwinkel erstellt.



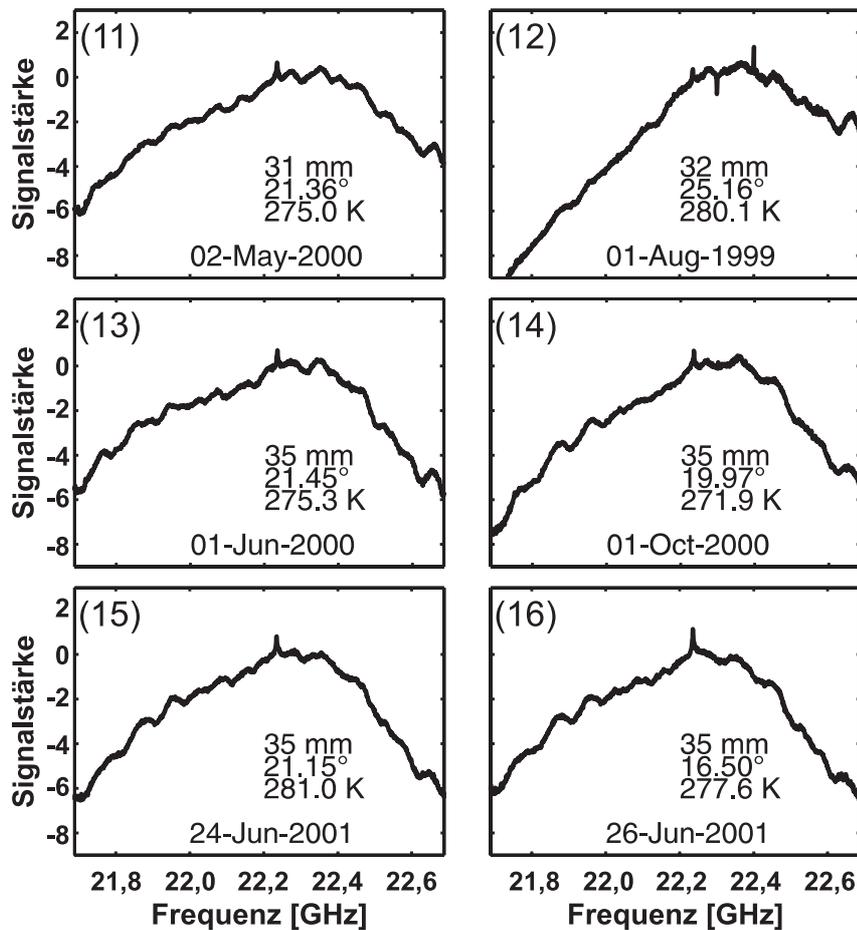


Abbildung 8.1: Differenzspektren gemäß Gleichung 4.14 von 16 Messungen mit jeweils etwa 30 Minuten Integrationszeit. Aufgetragen ist die Signalstärke über der Frequenz – die Spektren sind unkalibriert, aufgrund der geringen Änderung der Systemrauschktemperatur während der gesamten Meßperiode (sie erhöhte sich von 220 auf etwa 230 K seit März 1999, was etwa 4% ausmacht) sollten die Spektren dennoch vergleichbar sein. Sie wurden an verschiedenen Tagen zwischen März 1999 und Juni 2001 aufgezeichnet und gemäß der Dicke der im Gerät befindlichen Plexiglasplatten aufsteigend sortiert. Als zusätzliche Parameter wurden der mittlere Meßwinkel, sowie die Außentemperatur – beides kann einen Hinweis auf die äußeren Meßbedingungen geben – mit dargestellt. Es wird deutlich, daß die Form der Spektren sehr variabel ist, ebenso wie die auftretenden Baseline Effekte. Selbst Spektren mit ähnlichen Parametern, wie zum Beispiel Nummer 6 und 7 zeigen zum Teil erheblich unterschiedliche Formen.

Dieses ist unkompliziert, da die Zahl der möglichen Meßwinkel aufgrund der Quantisierung durch die Motorsteuereinheit (4.000 Positionen pro Umlauf =  $0,09^\circ$  als kleinster Winkelschritt) stark eingegrenzt ist. Bei einem Meßwinkel der üblicherweise zwischen  $15$  und  $25^\circ$  liegt, ergeben sich nur 111 mögliche Winkelpositionen. Innerhalb eines festgelegten Winkelbereiches wird zu jedem möglichen Meßwinkel geprüft, wieviele Messungen stattgefunden haben. Der optimale Meßwinkel, in dessen Winkelumgebung die meisten Messungen liegen wird für die Integration ausgewählt. Alle in der Umgebung befindlichen Messungen werden frequenzkalibriert und zu einem Tagesmittelwert zusammengefaßt. Für die in dieser Arbeit durchgeführten Auswertungen wurde ein Winkelbereich von  $\pm 0,5^\circ$  um den optimalen Meßwinkel gewählt. Für unsere Testauswertung ist dieses ausreichend, für eine endgültige Auswertung müßte jedoch erst einmal geprüft werden, welche Fehler durch einen zu groß gewählten Winkelbereich verursacht würden.

Die Vorgehensweise schränkt bei wechselhaftem Wetter die Zahl der integrierten Messungen stark ein. In Anhang B findet sich dazu ein Statistik über die mittleren Winkelvariation, die über die Jahre hinweg aufgetreten sind. Das neue Steuerungsprogramm MCP wurde daher darauf optimiert, die Winkelvariationen zu unterdrücken.

Bis zum Frühjahr 2001 wurde ein vereinfachtes Retrieval Verfahren für die Auswertung verwendet. Dabei wurden analog der Chlormonoxid Auswertung kalibrierte Spektren erzeugt und invertiert. Die Ergebnisse zeigten über das Jahr hinweg zwar eine Variation des stratosphärischen Wasserdampfes, die Ergebnisse ließen sich aber nicht mit der Theorie und den vorhandenen Klimatologien in Einklang bringen.

Das neue, in Zusammenarbeit mit Ingo Wohltmann entwickelte Retrieval verwendet hingegen unkalibrierte Spektren, die als Differenzspektren wie in Gleichung (4.14) zusammengefaßt werden. Als Folge ist das Vorwärtsmodell aber um ein vielfaches komplizierter. In ihm wird die Beobachtungsgeometrie von Signalstrahl und Referenzstrahl mit Fenster und Plexiglasplatte nachgestellt (siehe dazu auch den Abschnitt 5.6. Zahlreiche Parameter des Modells sind über das Jahr hinweg sehr variabel – die Stärke des Plexiglases wird durch den örtlichen Ingenieur den aktuellen klimatischen Bedingungen angepaßt, der Signalwinkel schwankt je nach troposphärischer Opazität, die stratosphärische Temperatur und erst recht die Außentemperatur wie auch die troposphärische Wasserdampfkonzentration wechseln innerhalb kürzester Zeit.

Die verschiedenen Einflüsse führen zu einer Vielzahl von unterschiedlichen Spektren, deren Form weitaus veränderlicher ist als zum Beispiel bei der 142 GHz Ozon- oder der 204 GHz Chlormonoxidlinie. Das Retrieval soll aus der Form der Linie die Spurengaskonzentration als Funktion der Höhe bestimmen. Sofern zu viele der Parameter, die auf die Form Einfluß nehmen können unbekannt sind, wird die Lösung der Inversion zunehmend schwieriger oder sogar unmöglich. Im Rahmen des Retrievalprozesses können einige der unbekannt GröÙen bestimmt werden; doch je mehr der unbekannt Parameter nachträglich bestimmt werden, um so weniger aussagekräftig sind die Ergebnisse.

In Abbildung 8.1 sind beispielhaft 16 willkürlich ausgewählte Spektren dargestellt, welche die ganze Bandbreite der möglichen Formen zeigen. Die Spektren sind gemäß der Dicke der zum Zeitpunkt der Messung in das Gerät eingestellten Plexiglasplatten aufsteigend sortiert. Als zusätzliche Parameter sind der Signalwinkel und die Außentemperatur mit dargestellt – sie geben in Verbindung mit der Plattendicke einen Hinweis auf die troposphärischen Bedingungen. Bei gutem Meßwetter ist die Atmosphäre optisch dünner als bei schlechtem Meßwetter. Die Folge ist, daß zum Ausgleich zwischen Signal- und Referenzstrahl eine dünnere Plexiglasplatte ins Gerät gestellt werden muß. Auch wird bei einer Verbesserung des Meßwetters bei gleicher Plexiglasplattendicke der Signalwinkel zunehmend geringer. Als Ergebnis ergibt sich, daß primär eine dünnere Plexiglasplatte, sowie sekundär ein geringerer Meßwinkel auf gute Meßbedingungen hinweisen. Beides sollte mit einer geringen Außentemperatur einhergehen, da diese über Gleichung (3.1) mit dem Wasserdampfgehalt der Atmosphäre verknüpft ist.

Was bei Betrachtung von Abbildung 8.1 zuerst auffällt ist, daß es eine Vielzahl von Verschiedenen Formen bei den Spektren gibt. Wenn man die Form auf die Dicke des Plexiglasses zurückführen will, erkennt man zum Beispiel an den Spektren 8 und ), daß gleiche Plattendicken sehr unterschiedliche Spektren verursachen können. Auch erkennt man an den Spektren 1 und 3, daß bei gleicher Plattendicke und unterschiedlichen Signalwinkeln nahezu gleiche Spektren gemessen werden.

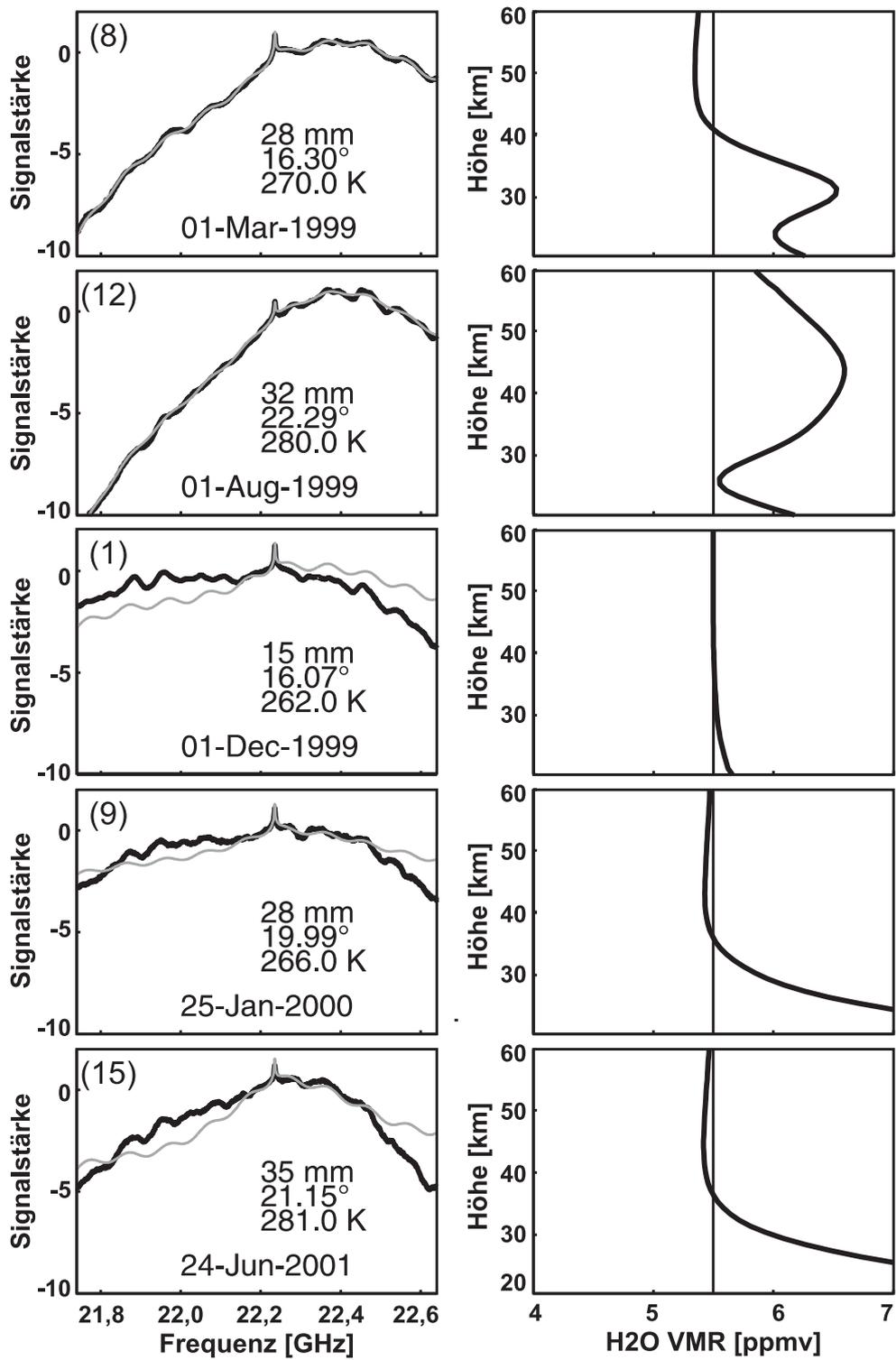


Abbildung 8.2: Fünf Beispiele für die Inversion von Referenzstrahl Spektren; ausgewählt wurden Spektren der verschiedensten vorkommenden Formen. Links jeweils die zusammengefaßten Spektren eines Tages (schwarz) mit den Forwärtsspektren aus der Inversion (grau). Die Numerierung entspricht der Abbildung 8.1. Rechts dazu jeweils die berechneten Wasserdampfprofile (dick, schwarz) mit dem zugehörigen a priori Profil (dünn, schwarz).

Auch führen vollkommen unterschiedliche Eingangsbedingungen wie beispielsweise in Spektrum 1 (dünnes Plexiglas, kleiner Winkel = gutes Wetter) über Spektrum 5 (mittleres Plexiglas, mittlerer Winkel) bis hin zu Spektrum 16 (dickes Plexiglas, mittlerer Winkel = schlechtes Wetter) zu erkennen, zu ähnlichen Ergebnissen.

Diese Spektren zeigen, welche Probleme die Auswertung zu bewältigen hat. Dabei wird insbesondere im nächsten Abschnitt noch deutlich werden, daß die Plexiglasplatte selbst einen großen Einfluß auf die Form der Spektren nimmt.

Abbildung 8.2 zeigt das Ergebnis der Referenzstrahl Inversion für fünf beispielhaft ausgewählte Tage. Jedes Spektrum ist ein Tagesmittelwert und wurde gemäß der weiter oben beschriebenen Vorgehensweise erstellt. Bei der Inversion wurden weder Slope noch Bias, dafür aber die Transmission der Plexiglasplatten als zusätzlicher Retrievalparameter mit kleinem Kovarianzwert mit angepaßt.

Offensichtlich ist, daß nur die beiden ersten Inversionen konvergiert haben; alle weiteren Inversionen wurden nach 50 Iterationsschritten automatisch abgebrochen (weitere Schritte führen zu keinem besseren Ergebnis). Dies ist typisch für das Referenzstrahl-Retrieval, wobei insbesondere die Form des Spektrums entscheidenden Einfluß auf das Konvergenzverhalten der Inversion hat. Die beiden ersten Inversionen sind zwar konvergiert, die Profile lassen sich aber dennoch kaum in Verbindung mit den zu erwartenden Wasserdampfkonzentrationen bringen – was zu erwarten wäre, wird im folgenden Abschnitt noch diskutiert.

Alles in allem führt unser Referenzstrahl Retrieval nicht zu vertrauenswürdigen Ergebnissen. Wir vermuten, daß zum einen die nicht bekannte troposphärische Untergrundtemperatur und zum anderen eine nicht genau bestimmte Plexiglas Transmission die Hauptursachen für die Inversionsprobleme sind. Erstere kann für den Wasserdampf bei der Referenzstrahl Methode nicht nachträglich gewonnen, letztere bis zur Reparatur des Radiometers nicht genauer

nachgemessen werden. Durch ein verringern der unbekannt Parameter ließe sich in jedem Fall das Retrieval verbessern.

## **8.2 Wasserdampfmessungen mit dem Totalpower-Verfahren**

Aus dem vorhergehenden Abschnitt geht hervor, daß die Auswertung unserer mittels der Referenzstrahl Methode gemessenen Wasserdampfspektren schwierig, wenn nicht sogar unmöglich ist. Insbesondere der unbekannt troposphärische Untergrund aufgrund des stetig schwankenden Wasserdampfgehaltes der Troposphäre, die Unmöglichkeit einer Kalibration der Strahlungsleistung, aber auch das sehr komplizierte Vorwärtsmodell im Retrieval machen bis jetzt eine Bestimmung von Wasserdampfprofilen unmöglich.

Wie in Abschnitt 4.6 schon beschrieben, bietet sich bei stärkeren Spurengaslinien auch das Totalpower Verfahren zur Messung an. Neben dem fehlenden Signaluntergrund und einer höheren Ausbeute an Daten aufgrund des gleichbleibenden Meßwinkels ist auch das Vorwärtsmodell – beschrieben in Abschnitt 5.6 – sehr viel einfacher. Zwar gehört die Wasserdampflinie nicht unbedingt in die Kategorie der »stärkeren« Linien, dennoch wurden im Sommer 2001 an mehreren Tagen testweise Wasserdampf Messungen nach dem Totalpower Verfahren durchgeführt. Als Meßwinkel wurde  $20^\circ$  gewählt, da die vorher stattfindende Referenzstrahlmessung ebenfalls einen Signalwinkel von etwa  $20^\circ$  bestimmt hatte und geplant war, diese im direkten Vergleich auszuwerten. Der optimale Totalpower Meßwinkel ist abhängig von der troposphärischen Opazität und muß – wie in Abschnitt 3.3 auch schon für die Modellrechnungen mit der 278GHz Chlormonoxidlinie geschehen – für die 22GHz Wasserdampflinie aus zahlreichen Vorwärtsrechnungen mit klimatologischen Daten berechnet werden. Zu erwarten ist, daß er im Jahresmittel zwischen  $20^\circ$  und  $40^\circ$  liegt.

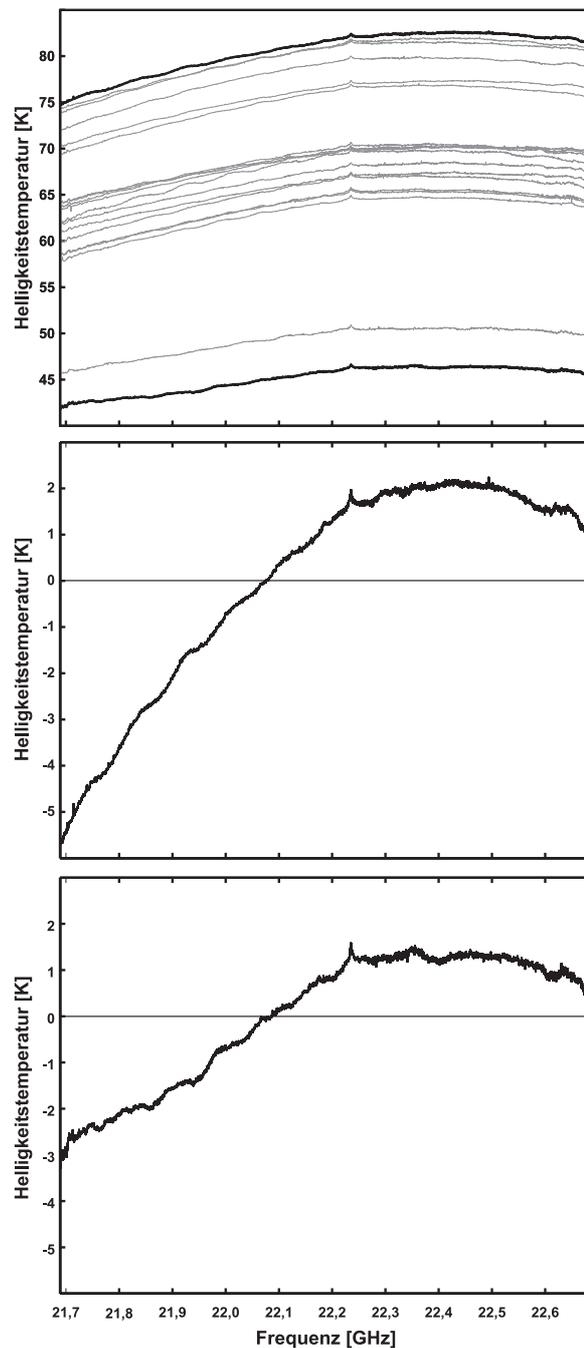


Abbildung 8.3: Einige Beispiele für Wasserdampf Spektren, die mit der Totalpower Methode gemessen wurden. Oben sind alle 19 aufgezeichneten Spektren dargestellt, im mittleren Feld ist das Spektrum mit dem größten und im unteren Feld das Spektrum mit dem kleinsten troposphärischen Signaluntergrund abgebildet (beide sind im oberen Feld zusätzlich hervorgehoben). Damit man sie besser miteinander vergleichen kann wurden sie mit ihrem Mittelwert auf 0 K Helligkeitstemperatur gesetzt (Daten vom 24. bis 26. Juni 2001).

Die Testmessungen fanden vom 24. bis zum 26. Juli statt, und beinhalteten insgesamt 19 Einzelmessungen. Die Spektren der Messungen sind in Abbildung 8.3 dargestellt. Im oberen Feld jeweils alle Messungen, das mittlere Feld ist die Messung mit der größten und das untere Feld mit der kleinsten troposphärischen Untergrundtemperatur abgebildet – die beiden Messungen wurden zur besseren Vergleichbarkeit mit ihrem Mittelwert auf 0 K Helligkeitstemperatur gesetzt. Man erkennt sofort, daß die troposphärischen Schwankungen innerhalb der drei Tage sehr groß waren. Es gibt deutlich abgesetzt drei Gruppen von Spektren, die eine Korrelation zur Außentemperatur zeigen. Die obersten sechs Spektren wurden bei Temperaturen von 275 bis 276 K aufgezeichnet (24. Juni zwischen 22 Uhr 30 und 2 Uhr 15), die mittleren 11 Spektren bei Temperaturen von 276 bis 279 K (24. Juni zwischen 17 Uhr und 20 Uhr; 25. Juni zwischen 3 Uhr und 6 Uhr 30) und die untersten beiden Spektren bei Temperaturen von 286 K (oben, 26. Juni um 17 Uhr) und 280 K (unten, 25. Juni um 7 Uhr 30).

Wie in Abschnitt 3.1 beschrieben, ist die Dynamik des stratosphärischen Wasserdampfes von eher langfristigen, jahreszeitlichen Schwankungen geprägt. Lediglich wenn der Polarwirbel über den Beobachtungsstandort Ny-Ålesund hinwegzieht sollten sich innerhalb weniger Tage merkliche Änderungen in der Stratosphäre vollziehen. Das mittlere und das untere Feld zeigen, wie stark sich die Form des Spektrums dennoch innerhalb von nur drei Tagen ändert. Dieses kann daher nur auf die Variation der Troposphäre zurückzuführen sein; dieses zeigt sich auch in der Variation der Strahlungstemperatur des Signaluntergrundes, der in dieser Zeit zwischen 40 und 80 K schwankt. Und obwohl sich damit auch die troposphärische Opazität ändert, besitzen alle Spektren eine zentrale Linie von gleichbleibend etwa 500 mK Stärke.

Abbildung 8.4 zeigt die mittleren Helligkeitstemperaturen der Messungen (als schwarze Kreise) sowie die vor dem Labor gemessenen atmosphärischen Außentemperaturen (als weiße Kreise). Grundsätzlich würde man erwarten, daß eine höhere Außentemperatur gemäß Gleichung (3.1) zu einer höheren Wasserdampfkonzentration in der unteren Troposphäre und damit zu einer größeren troposphärischen Opazität führen würde. Aufgrund dessen würde man erwarten, daß bei warmen Außentemperaturen der troposphärische Signaluntergrund ansteigt. Jedoch zeigt sich, daß beide Werte (für die gemessenen sommerlichen Temperaturen von 276 bis 288 K) antikorreliert sind. Eine kurzzeitige Inversionswetterlage, bei der in der unteren Troposphäre über Ny-Ålesund

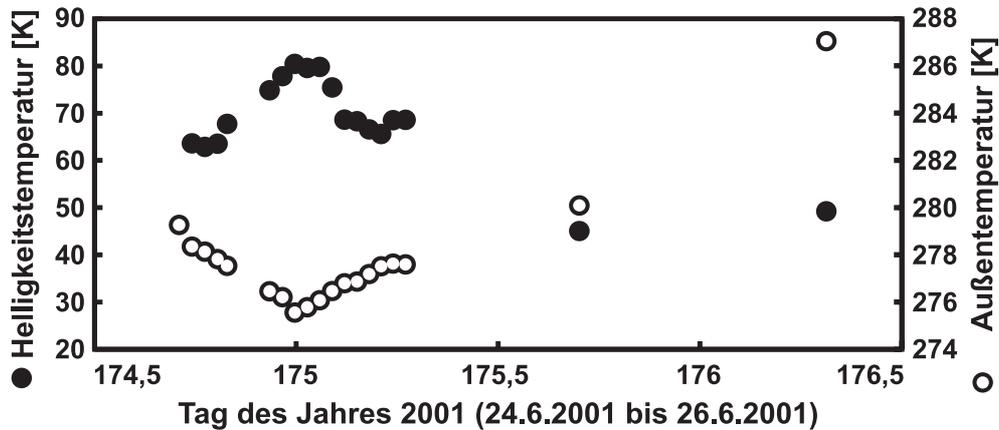


Abbildung 8.4: Die mittleren Helligkeitstemperaturen der einzelnen Messungen (schwarze Kreise) sowie die vor dem Labor gemessenen Außentemperaturen (weiße Kreise).

warme Meeresluft einströmt, während die mittlere Troposphäre davon unbeeinflusst bliebe könnte das beobachtete Verhalten erklären. Letztendlich reicht der bisher vorhandene zweitägige Datensatz für eine endgültige Erklärung des Phänomens jedoch noch nicht aus.

Interessant ist auch ein Vergleich der Linienformen zu den Spektren aus Abbildung 8.1. Alle Totalpower Spektren haben in etwa die gleiche Form, wenn auch die 0,1 GHz Stehwelle in den verschiedenen Spektren mehr oder weniger stark ausgeprägt ist. Alle Spektren weisen eine Form auf, bei der die linke (niederfrequente) Flanke niedriger liegt als die rechte (hochfrequente) Flanke. Dieses ist auch bei einem Teil der Referenzstrahl Spektren der Fall, wobei insbesondere die Spektren Nummer 4, 6 und 8 die größte visuelle Übereinstimmung zeigen. Diese Spektren besitzen aber weder bei der Außentemperatur, noch bei der Jahreszeit Gemeinsamkeiten zu den Totalpower Spektren. Die vergleichbarsten Referenzstrahl Spektren vom 24. und 26. Juni 2001 (Nummer 15 und 16) zeigen jedenfalls keine größeren Ähnlichkeiten. An der Änderung des Signalwinkels zwischen den beiden Spektren von  $21^\circ$  auf  $16,5^\circ$  läßt sich aufgrund der gleich gebliebenen Plexiglas Platte erkennen, daß die troposphärische Opazität in der Zwischenzeit abgenommen hat – dieses ist im Einklang mit dem Absinken der troposphärischen Untergrundtemperatur von anfänglich etwa 65 K auf schließlich etwa 45 K in den Totalpower Spektren.

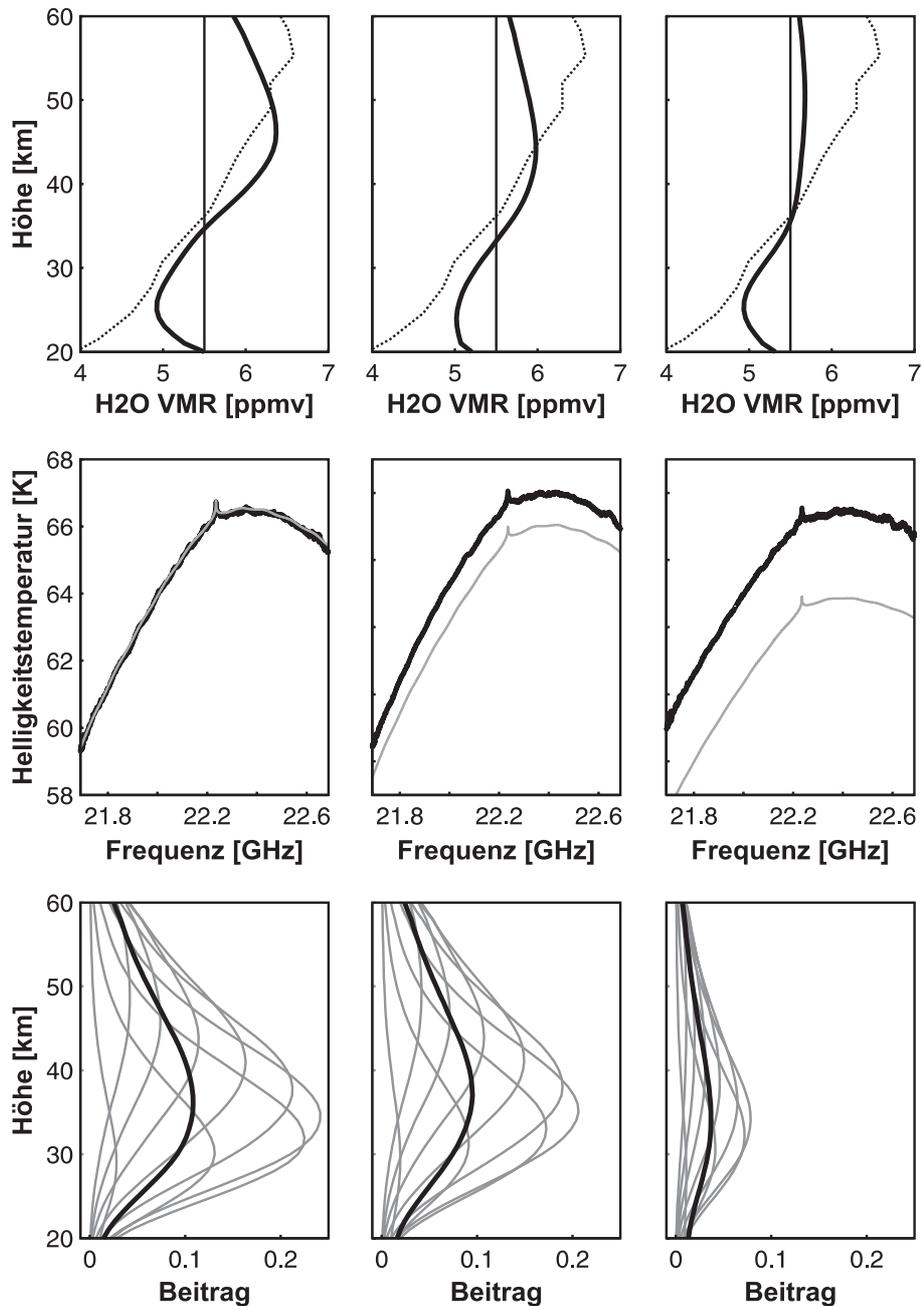


Abbildung 8.5: Die Ergebnisse der Inversion dreier zusammengefaßter Totalpower Spektren. Oben jeweils die Profile als dicke, sowie das in diesem Höhenbereich konstante a priori Profil als dünne durchgezogene Linie; zum Vergleich ist eine UARS/HALOE Klimatologie für Juli und  $80^\circ$  Nord als Punktlinie eingezeichnet. In der Mitte jeweils das Spektrum (schwarz) und Vorwärtsspektrum (grau) der Inversion. Unten die Auflösungsfunktionen für die Höhen von 20 bis 60 km (grau) sowie die auf 10% skalierte Einhüllende (schwarz).

Damit ist es ein weiteres Indiz dafür, daß die Linienform der Referenzstrahl Spektren stark durch die Meßmethode und im Besonderen durch die Plexiglasplatte beeinflusst wird.

Abbildung 8.5 zeigt die Ergebnisse der Inversion dreier Totalpower Spektren. Sie entstammen jeweils einer der Gruppen aus Abbildung 8.3 und wurden in zeitlicher Abfolge gemessen. Die linke Spalte besteht aus fünf Spektren der mittleren Gruppe, die am 24. Juni zwischen 17 Uhr und 20 Uhr gemessen wurden. Die mittlere Spalte besteht aus sechs Spektren der oberen Gruppe, die am 24. Juni zwischen 22 Uhr 30 und 2 Uhr 15 gemessen wurden. Die rechte Spalte schließlich besteht aus sechs Spektren der mittleren Gruppe, die am 25. Juni zwischen 2 Uhr 45 und 6 Uhr 30 gemessen wurden.

Um eine bessere Vergleichbarkeit zu gewährleisten, wurde bei allen Spektren die gleichen Parameter für die Inversion sowie die gleichen Kovarianzen angenommen. Als a priori Profil wurde eine Exponentialverteilung für einen Höhenbereich von 0 bis 19km angenommen, die in 20km Höhe in ein konstantes Wasserdampf VMR von 5,5ppmv übergeht. Zur Verbesserung der Stabilisierung der Inversion wurde die Exponentialverteilung mit einem an den troposphärischen Untergrund angepaßten Faktor multipliziert. Aufgrund der logarithmierten Profile, mit denen die Optimal Estimation Inversion nach Levenberg-Marquardt durchgeführt wurde sowie der fehlenden statistischen Datenbasis können noch keine Aussagen zu den tatsächlichen Fehlern der Messung gemacht werden. Daher sind bisher nur qualitative Aussagen möglich.

Für eine genaue Abschätzung aller Inversionsparameter reicht ohnehin die Datenbasis aus 19 Spektren nicht aus. So kommt es, daß die mittlere und insbesondere die rechte Inversion bei den gewählten Parametern nicht hinreichend konvergieren. Erkennbar ist dieses auch an den Auflösungsfunktionen. Während die Einhüllende der Auflösungsfunktion der linken Inversion bis auf 1,0 ansteigt – das bedeutet daß in der entsprechenden Höhe kaum ein Einfluß des a priori Profiles vorhanden ist –, sinkt diese bei der mittleren Inversion etwas ab um bei der rechten Inversion auf 0,3 zu fallen – das bedeutet, daß das a priori Profil mehr als zwei Drittel Anteil am Ergebnis besitzen kann.

Die Spurengasprofile als Ergebnis der Inversion (erste Zeile, dicke Linien) wurden zum Vergleich mit einer Klimatologie aus Daten des UARS/HALOE für den Monat Juni auf 80° Nord (Punktlinie) aufgetragen. Für den Beobachtungszeitraum existieren keine aktuellen Daten anderer Instrumente, so daß nur dieser Vergleich bleibt.

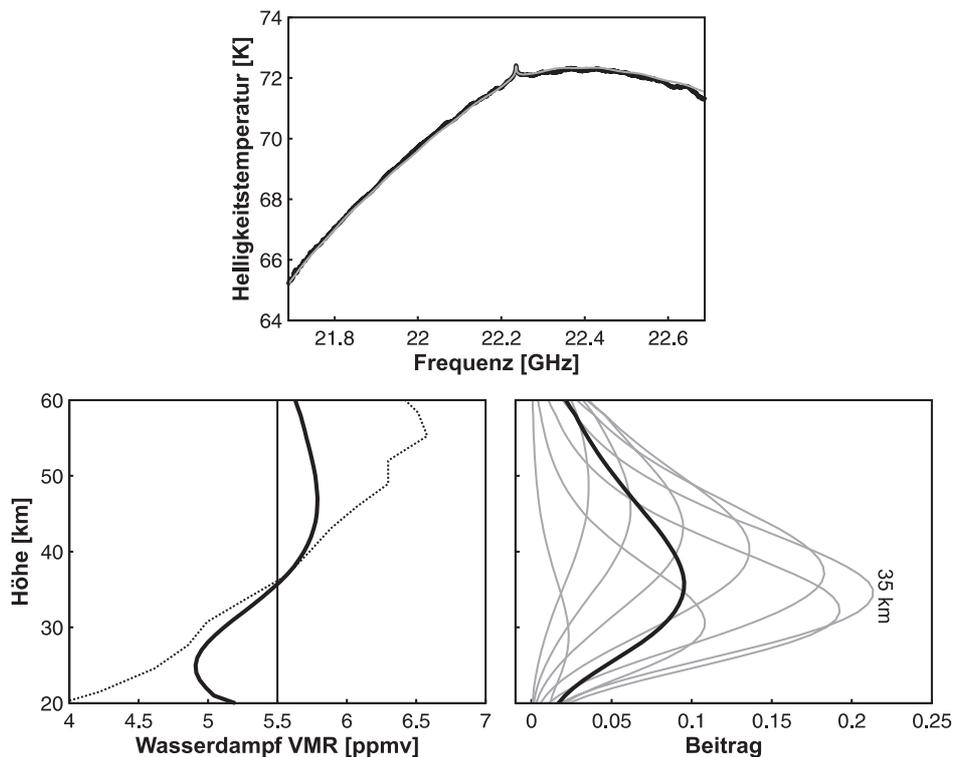


Abbildung 8.6: Das Ergebnis der Inversion eines Mittelwertes aller Messungen des 24. und 25. März 2001. Oben das Spektrum (schwarz) und das Vorwärtsspektrum (grau). Unten, links das Profile als dicke sowie das a priori Profil als dünne durchgezogene Linie; zum Vergleich ist eine UARS/HALOE Klimatologie für Juli und  $80^\circ$  Nord als Punktlinie eingezeichnet. Unten, rechts die Auflösungsfunktionen für die Höhen von 20 bis 60 km (grau) sowie die auf 10% skalierte Einhüllende (schwarz)

Grundsätzlich entsprechen die Ergebnisse den Erwartungen – wie aus Abbildung 3.1 ersichtlich sollte die arktische Wasserdampfkonzentration von minimal etwa 3 ppmv in der Tropopause bis in etwa 55 km Höhe auf bis zu 7 ppmv ansteigen. Positiv ist auch zu bemerken, daß das Retrieval auch bei schlecht angepaßten Inversionsparametern zu einem Profil tendiert, bei dem zwischen 25 und 40 km ein ansteigendes Wasserdampf VMR erzeugt wird. Dabei reagiert die Steigung insgesamt aber empfindlich auf eine Veränderung der Kovarianzen.

Abbildung 8.6 zeigt das Ergebnis, wenn alle 17 Spektren der oberen und mittleren Gruppe integriert und invertiert werden. Die beiden abgesetzten 45 K Spektren wurden ignoriert, da sie von ihrer Form her stark von den anderen Profilen abweichen. Das Ergebnis der Inversion ist ähnlich dem aus Abbildung

8.5 und entspricht wiederum grob dem Erwarteten. Die Auflösungsfunktionen haben ihren höchsten Wert in etwa 35 km Höhe, in der auch die Einhüllende einen Wert von 1 erreicht. Die Halbwertsbreite und damit Höhenauflösung der Inversion liegt zwischen 15 und 20 km.

Abschließend bleibt zu bemerken, daß eine genaue Anpassung der Inversionsparameter erst nach Auswertung zahlreicher Totalpower Messungen durchgeführt werden kann. Unglücklicherweise mußte das Spektrometer des RAM kurz nach den Messungen wegen eines Defektes der Laserdiode ausgebaut und an den Hersteller geschickt werden. Daher konnten bisher keine weiteren Messungen durchgeführt werden, und so bleibt eine endgültige Aussage über die Tauglichkeit des Totalpower Verfahrens den nachfolgenden Arbeiten vorbehalten.

### 8.3 Stehwellen in den Totalpower Spektren

Auf einigen der Totalpower Spektren sieht man mit bloßem Auge deutlich die 0,1 GHz lange (beziehungsweise 1,5 m) Stehwelle. Da bei diesem Meßverfahren kein Plexiglas im Stahlgang war, kann dieses – wie in Abschnitt 6.3 schon vorweggenommen – damit als Ursache ausgeschlossen werden. Abbildung 8.7 zeigt zur Verdeutlichung die Residuen aus Totalpower Spektrum minus dem mittleren Spektrum aller 19 Messungen. Man erkennt, daß sowohl die Intensität als auch die Phase der Stehwelle variiert. Eine Variation der Stehwellenfrequenz läßt sich bei diesem kurzzeitigen Datensatz jedoch nicht feststellen. Die 0,58 GHz Stehwelle läßt sich hingegen in den Meßspektren auf den ersten Blick nicht identifizieren. Sie läßt sich zweifelsfrei nur in den Ergebnissen einer Inversion nachweisen, wenn das Residuum aus Meßspektrum Minus Vorwärtsspektrum gebildet wird. Abbildung 8.8 zeigt das Residuum der ersten Totalpower Inversion aus Abbildung 8.6. Neben »Resten« der 0,1 GHz Stehwelle, die weitaus kleiner sind als die 0,5 K starke Zentrallinie, ist die 0,58 GHz Stehwelle nur ganz schwach zu erahnen.

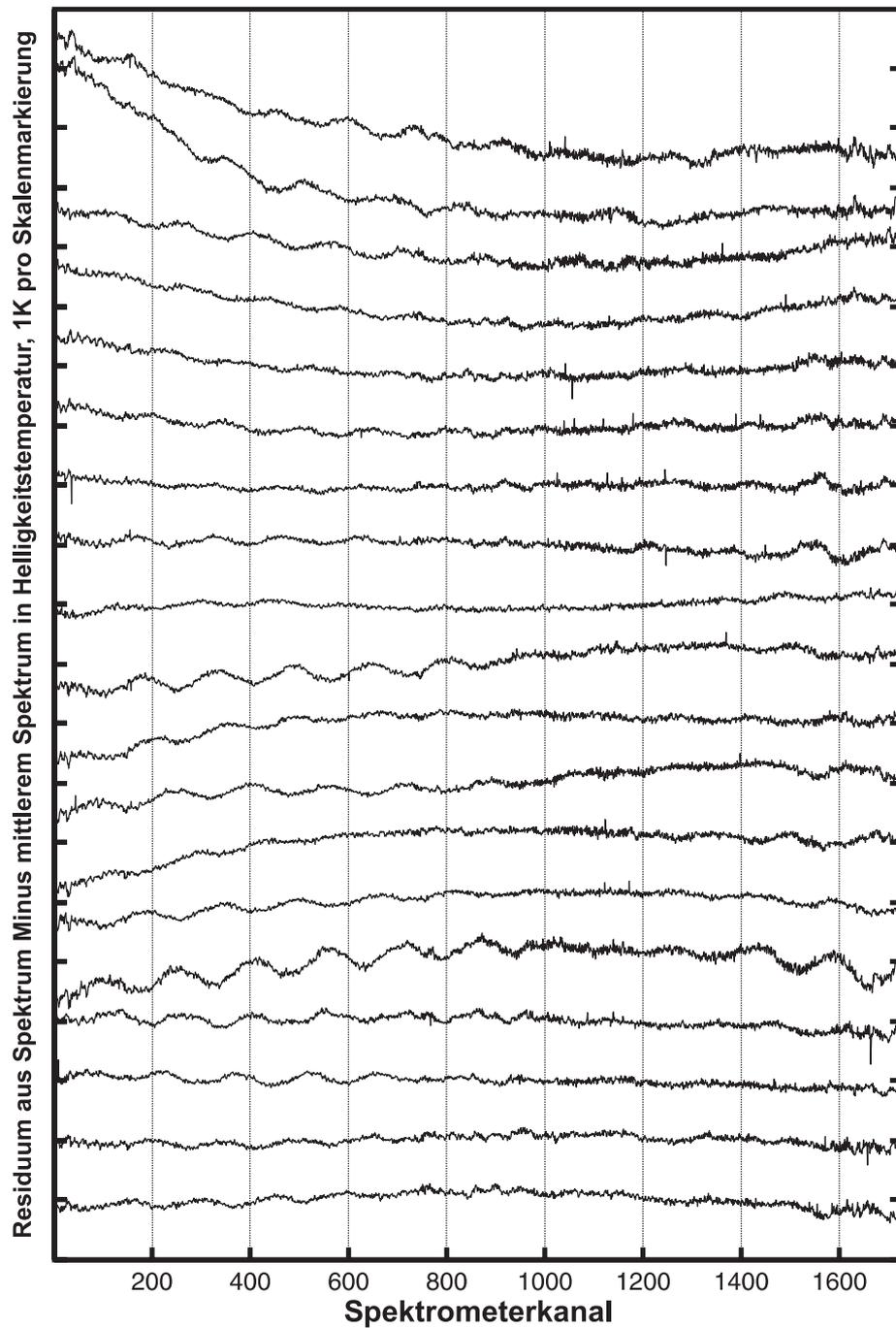


Abbildung 8.7: Abgebildet sind die Residuen aus Spektrum Minus dem mittlerem Spektrum der 19 Totalpower Messungen. Unten das erste Spektrum, oben das letzte der 19 Spektren. Jede Markierung auf der Ordinate entspricht einer relativen Helligkeitstemperatur von einem Kelvin.

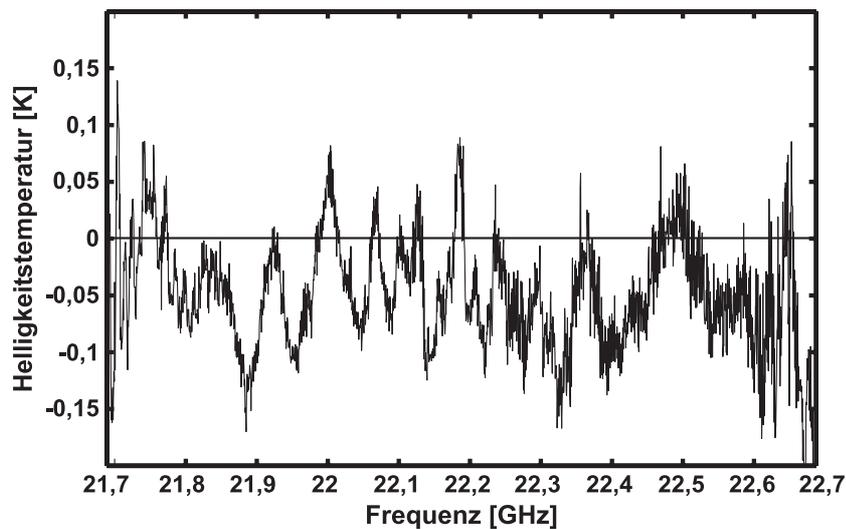


Abbildung 8.8: Das Residuum als Spektrum Minus Vorwärtsspektrum der Inversion aus Abbildung 8.6. Reste der 0,1 GHz Stehwelle sind deutlich zu erkennen, die 0,58 GHz Stehwelle läßt sich jedoch nur erahnen.

Von beiden Stehwellen ist die mit 0,58 GHz am problematischsten. Mit ihrer Frequenz, die in etwa die halbe Spektrometerbandbreite ausmacht kann sie die Linienform im ganzen beeinflussen, ist damit nur schwer im Spektrum zu identifiziert und kann deshalb beim Retrieval kaum ausgeglichen werden. Durch eine Beseitigung dieser Stehwelle ließe sich sowohl das Referenzstahl als auch das Totalpower Retrieval deutlich verbessern.

## 8.4 Fazit zu diesem Kapitel

Es hat sich gezeigt, daß die Referenzstrahlmethode für unsere Wasserdampf Messungen nicht geeignet ist. Insbesondere der troposphärische Wasserdampf ist für einen sehr variablen Signaluntergrund verantwortlich – und gerade Ny-Ålesund, das sich auf Meereshöhe inmitten des Nordpolarmeeres befindet ist davon stark betroffen. Das Referenzstrahl Verfahren gibt keine Informationen, aus denen man diese Information für den Wasserdampf nachträglich bestimmen kann. Aufgrund des starken Konzentrationsabfalles mit der Höhe ist die Inversion zudem stark nichtlinear; zur Lösung dieses Problemes wurden ein aufwendiges Verfahren nach Levenberg-Marquardt sowie logarithmierte Pro-

filinformationen verwendet. Diese verschiedenen Gründe in Verbindung mit einem durch die Meßmethode notwendigerweise sehr komplizierten Vorwärtsmodell führte letztendlich zu kaum verwertbaren Ergebnissen.

Schwache Spurengaslinien bedingen üblicherweise die Verwendung der Referenzstrahlmethode oder ähnlich empfindlicher Meßverfahren. Dennoch zeigte sich das Totalpower Verfahren bei unserem Radiometer als durchaus geeignet zur Messung von Wasserdampfspektren. Neben kalibrierten Spektren inklusive des troposphärischen Untergrundes sowie eines sehr einfachen Vorwärtsmodells ist auch von Vorteil, daß alle Messungen unter dem gleichen Winkel stattfinden und so die Meßzeit optimal ausgenutzt werden kann.

Die ersten Ergebnisse sind in Hinblick auf die Probleme mit den Referenzstrahlmessungen vielversprechend, aber noch nicht sehr aussagekräftig, da sie sich auf die Messungen zweier Tage gründen und zudem bisher die Vergleichsmöglichkeiten fehlen. Da das akustooptische Spektrometer des RAM im Herbst 2001 zur Reparatur zum Hersteller geschickt werden mußte, waren keine weiteren Messungen im Rahmen dieser Arbeit mehr möglich.

Daß die Optimal Estimation Methode mit dem verwendeten Levenberg-Marquardt Verfahren zu durchaus brauchbaren Resultaten führt, hat die Anwendung auf die Totalpower Spektren gezeigt. Gegebenenfalls lassen sich durch Verwendung eines Mehrschichtenmodelles aus den Referenzstrahl Daten kalibrierte Wasserdampfspektren erzeugen und mit einem einfacheren Vorwärtsmodell invertieren.

## 9 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Standorte auf ihre Tauglichkeit für ein mögliches Mikrowellenradiometer untersucht. Das zukünftige Gerät soll die Chlormonoxidlinie bei 278 GHz messen, wobei sich der troposphärische Wasserdampf als limitierender Faktor darstellte. Anhand von Modellrechnungen wurde festgestellt, daß sich die Standorte Summit auf dem grönländischen Zentralplateau sowie die Bergstation auf dem Pico Espejo in Mérida, Venezuela am Besten eignen. In Folge dieser Untersuchungen werden in den nächsten Jahren zwei zusätzlich Meßgeräte – das RAMAS und das MARS Radiometer – in Betrieb genommen; doch dazu mehr im Ausblick.

Das RAM in Ny-Ålesund ist mit seinem Chlormonoxid Frontend bislang das einzige Gerät, mit dem innerhalb des nördlichen Polarwirbels auf regelmäßiger Basis die jeden Winter stattfindende Aktivierung des stratosphärischen Chlormonoxids beobachtet werden kann.

Ein Teil dieser Arbeit war der Verbesserung der Chlormonoxid Auswertung gewidmet. In den Jahren 1999 bis 2000 wurden dazu mehrere technische Änderungen am Chlormonoxid Frontend vorgenommen, die letztendlich zu einer merklich besseren Gerätebaseline geführt haben. Aufgrund des frühzeitigen Zusammenbruchs des Polarwirbels im Jahr 2001 und den daher fehlenden Chlormonoxid Messungen steht die Bewertung der zuletzt durchgeführten Umbauten jedoch noch aus. Für die Auswertung der Chlormonoxid Spektren wurde zudem eine neue Software implementiert, die nach einem verbesserten Verfahren aus den Spektren die verbliebene Baseline eliminiert.

Für 15 Tage zwischen Ende Februar und Anfang April 2000 wurden Chlormonoxid Spurengasprofile berechnet. Unsere Ergebnisse zeigten dabei eine gute Korrelation zum Ozonabbau, der aus Messungen des Ozon Radiometers bestimmt wurde.

Für die SOLVE-THESEO 2000 Kampagne ergab sich die Möglichkeit eines Vergleiches mit zwei weiteren Instrumenten. Für das flugzeuggetragene Radiometer ASUR an Bord der NASA DC-8 gab es nur einen Vergleichstag, die

Übereinstimmung der Instrumente war mit 0,06 ppbv (weniger als 10% Abweichung) in 20km Höhe jedoch außerordentlich gut. Gleiches zeigte sich auch beim direkten Vergleich der Profildaten. Der Vergleich mit dem CLONO<sub>2</sub> in situ Instrument an Bord der NASA ER-2 ergab qualitativ eine Übereinstimmung für die zunehmende Chlormonoxid Deaktivierung im Verlauf des März 2000.

Der Vergleich mit dem chemischen Transportmodell SLIMCAT der Universität Leeds hat in unserer Arbeitsgruppe eine langjährige Tradition. Für das Jahr 2000 ergab sich eine gute Übereinstimmung zwischen den Daten des RAM und des Modells. Zwar unterschätzt SLIMCAT unsere Messungen. Doch zeigen sowohl das Modell als auch unsere Messungen für Anfang März den gleichen Chlormonoxidabbau auf zwei Drittel des Ursprungswertes.

Aufgrund der verbesserten Baseline und der guten Wetterbedingungen ergab sich im Jahr 2000 zum ersten Mal die Möglichkeit hochaufgelöste Chlormonoxid Tagesgänge aufzuzeichnen. Über sieben Tage hinweg wurde die tägliche Chloraktivierung und -deaktivierung beobachtet und im Detail untersucht. Unsere Ergebnisse für 20 und 40km Höhe werden von anderen Beobachtungen und Modellierungen bestätigt.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das RAM um ein Frontend zur Messung der 22GHz Wasserdampflinie erweitert. Die technischen Eigenschaften des Gerätes sowie die Änderungen in den vergangenen Jahren wurden ausführlich beschrieben und es wurde gezeigt, daß das Gerät nach der Referenzstrahl- sowie der Totalpowermethode Spektren messen kann. Es hat sich dabei gezeigt, daß die vorgesehene Referenzstrahlmethode für unsere Wasserdampf Messungen nicht geeignet ist. Der troposphärische Wasserdampf ist für einen sehr variablen Signaluntergrund verantwortlich, die im Rahmen des Retrievals nicht nachträglich bestimmt werden kann. Gerade Ny-Ålesund ist mit seiner Lage auf Meereshöhe inmitten des Nordpolarmeeres davon stark betroffen. Der exponentielle Abfall des Wasserdampf VMR mit der Höhe verursacht ein stark nichtlineares Inversionsproblem, das nur durch Verwendung des komplizierten Levenberg-Marquardt Verfahrens sowie logarithmierter Profile gelöst werden konnte. In Verbindung mit einem durch die Referenzstrahlmethode sehr komplizierten Vorwärtsmodells führt all das zu Ergebnissen, die mit den Erwartungen nicht in Einklang zu bringen sind.

Im Sommer 2001 wurden an zwei Tagen Testmessungen nach der Totalpowermethode durchgeführt. Die ersten Ergebnisse sind vielversprechend, wenn

auch eine letztendliche Aussage über die Möglichkeiten erst nach weiteren Messungen gemacht werden können. Neben kalibrierten Spektren inklusive des troposphärischen Signaluntergrundes sowie eines sehr einfachen Vorwärtsmodells ist auch von Vorteil, daß alle Totalpower Messungen unter dem gleichen Winkel stattfinden und so problemlos zusammengefaßt werden können.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neue Steuerungssoftware für das Radiometer implementiert. Das bisher verwendete Programm `MControl` zeigte sich der Steuerung der drei spitzbergener Radiometer nicht mehr gewachsen und mußte daher ersetzt werden. Das neue Steuerungsprogramm `MCP` ist modular aufgebaut und läßt sich daher leicht an zukünftige Änderungen und Erweiterungen der Meßgeräte anpassen. Neben dem RAM steuert `MCP` seit Anfang des Jahres 2000 auch das `BreRAM` in Bremen und wird auch für das zukünftige Radiometer `RAMAS` in Summit verwendet werden. Ein positiver Nebeneffekt war die Möglichkeit der Einführung eines neuen, offenen Datenformates. Es wurde so definiert, daß es sich problemlos um weitere Spezies und Housekeeping Daten erweitern läßt und trotzdem kompatibel zu seinen eigenen, älteren Versionen bleibt. Damit müssen bei zukünftigen Erweiterungen des Gerätes oder des Steuerungsprogrammes keine Änderungen an den bisher verwendeten Auswerteprogrammen vorgenommen werden.



## 10 Ausblick

Anfang des Jahres 2002 wird ein neues Gerät mit dem Namen »Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography« (abgekürzt SCIAMACHY) auf dem ENVISAT Satteliten der ESA starten. Es handelt sich bei dem Instrument um einen sogenannten »Limb Sounder«, der mit seinem Sehstrahl auf verschiedenen Geometrieen in und durch die Atmosphäre blicken kann und unter anderem auch die Spezies Ozon, Chlormonoxid und Wasserdampf mißt. Die verkippte Polarbahn, auf der sich ENVISAT bewegen wird, bringt das Gerät auch auf die Breite von Ny-Ålesund und damit in das Beobachtungsgebiet des RAM. Aus diesem Grund wird unser Gerät an der Überprüfung und Qualitätssicherung von SCIAMACHY Ergebnissen – der sogenannten Validation – teilnehmen. Die Validation eines Satelliten Instrumentes ist eine langwierige Aufgabe. Neben dem RAM werden in den folgenden Jahren auch zahlreiche andere Meßgeräte des Instituts wie zum Beispiel das ASUR Instrument und die verschiedenen DOAS (Abkürzung für »Differential Optical Absorption Spectroscopy«) damit beschäftigt sein.

Die letzten, bisher noch nicht verifizierten Verbesserungen der Gerätebaseline des Chlormonoxid Radiometers geben Grund zur Hoffnung für zukünftigen Messungen. Die Baseline befindet sich jetzt im gleichen Größenbereich wie die beobachtete Signallinie und wirkt zudem sehr gleichmäßig. In jedem Fall gibt dieses Vorteile bei der Bildung der Tag-minus-Nacht Differenzen. Gegebenenfalls ist sie jetzt aber auch stabil genug, so daß auf Tag-minus-Nacht Differenzen gänzlich verzichtet werden kann. Dieses hätte mehrere Vorteile, denn die unbekannt Information über das in der Nacht thermisch dissoziierte Chlormonoxid wäre aus den Spektren entfernt und man könnte durch ein verbessertes Retrieval auch den Höhenbereich zwischen 30 und 45 Kilometer voll erschließen.

Das verbesserte Retrieval Verfahren könnte sich dabei an dem jetzt bei den Wasserdampf Messungen verwendeten Verfahren orientieren. Dabei werden die Signal- und Referenzstrahlen getrennt vorwärts gerechnet, wobei die Beob-

achtungsgeometrie mit Fenster, Plexiglas und Troposphäre berücksichtigt werden. Dadurch würde der Airmass-Faktor Fehler für die von der Referenzhöhe abweichende Höhenschichten entfallen – dieser nimmt gegenwärtig noch Einfluß auf den Höhenbereich von 30 bis 45 Kilometer.

Schon seit längerem ist in Planung, den Schottky Mischer durch einen empfindlicheren SIS Mischer (die Abkürzung steht für »Superconductor Insulator Superconductor« und bezeichnet einen weitaus empfindlicheren Typ von Empfängerdiode) zu ersetzen. Die Systemrauschetemperatur im Einseitenbandbetrieb sollte sich dann von jetzt 800 auf unter 400 Kelvin senken; gemäß der Radiometergleichung (4.6) würde sich dadurch die Integrationszeit um den Faktor 4 verringern. Ist es bei guten Bedingungen jetzt schon möglich hochaufgelöste Chlormonoxid Tagesgänge zu beobachten, sollte dieses dann bei normalen Wetterbedingungen möglich sein. Zudem würde sich die Zahl der Tage an denen Messungen durchgeführt werden können drastisch erhöhen. Im Zuge eines Mischerumbaus könnte auch die Quasioptik des Gerätes vereinfacht werden, was sich positiv auf die Baseline auswirken könnte.

Es wurde in dieser Arbeit gezeigt, daß die Referenzstrahl Methode nicht das beste Verfahren zur Bestimmung von Wasserdampfspektren ist. Gegebenenfalls können aber dennoch durch eine geeignetere Auswertung aus den bisher gewonnenen Meßdaten brauchbare Ergebnisse gewonnen werden.

Vielversprechender ist in jedem Fall die Verwendung der Totalpower Methode, bei der kalibrierte Spektren inklusive des troposphärischen Signaluntergrundes gemessen werden. Gegenwärtig fehlt noch der Stickstoff, um dauerhaft Totalpower Messungen in Ny-Ålesund durchführen zu können. Zwar wird ausreichend viel flüssiger Stickstoff durch den lokalen Luftverflüssiger erzeugt, doch dieser wird gegenwärtig noch vom Ozon Frontend des RAM benötigt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde im Winter 2001 der bisherige, altersschwache 142 GHz Mischer durch einen neuen, empfindlicheren ersetzt. Dieser kann durch die im Gerät eingebaute Kühlmaschine analog dem Chlormonoxid Radiometer auf etwa 10 K heruntergekühlt werden. Der frei werdende Flüssigstickstoff steht dann für das Wasserdampf Radiometer zur Verfügung. Erste Kühlungstests mit dem neuen Ozon-Mischer waren erfolgreich, so daß er wahrscheinlich ab Sommer 2002 dauerhaft gekühlt betrieben werden kann.

Wie die durchgeführten Untersuchungen gezeigt haben, ist der in Ny-Ålesund verflüssigte Stickstoff stark mit Sauerstoff verunreinigt. Da er bei Totalpower Messungen als Kalibrationslast mit genau bekannter Temperatur

benötigt wird, sollte zur Umstellung der Wasserdampf Meßmethodik auch eine Erweiterung der Housekeeping Daten um einen entsprechenden Temperaturfühler vorgenommen werden.

Ein Vorteil aus den Totalpower Messung ließe sich auch bei der Bestimmung von Wasserdampfsäulen ziehen. Bislang werden sie in unserer Arbeitsgruppe mit einem relativ großen Fehler aus den Messungen der troposphärischen Opazität mittels des Ozon Radiometers bestimmt. Bei Verwendung einer weiteren Meßfrequenz ließe sich der Anteil von Wasserdampf, Regen- und Wolkenwasser besser trennen und so genauere Ergebnisse erzielen.

Im Gegensatz zu der 204GHz Chlormonoxid- oder der 142GHz Ozonlinie ist die 22GHz Wasserdampflinie von ihrer Vorwärtsmodellierung her viel komplizierter. Bei der Untersuchung der gemessenen Spektren hat sich gezeigt, daß das von Ingo Wohltmann entwickelte Vorwärtsprogramm nicht alle Spektren nachbilden kann. Es gilt dabei auch noch zu klären, inwieweit ein einfaches Vorwärtsprogramm mit einem unaufgeweiteten, dünnen Sehstrahl dem realen Radiometer mit seinen  $6^\circ$  Öffnungswinkel gerecht werden kann. In der Arbeitsgruppe von Stefan Bühler wurde in den vergangenen Jahren das universelle Vorwärtsprogramm ARTS (für »Atmospheric Radiation Transfer System«) entwickelt. Das Programm steht kurz vor der Vollendung. Es bietet sich an, dieses Programm bei zukünftigen Wasserdampf Auswertungen zu testen und gegebenenfalls ganz zu verwenden.

Eines der großen Probleme des Wasserdampf Radiometers ist die Spiegelsteuerung, die gegenwärtig über eine Motorsteuereinheit des Typs »Unidex 100« der Firma »Aerotech« erfolgt. Das Gerät leistet bei den Ozon- und Chlormonoxid Radiometern mit ihren kleinen Spiegeln gute Dienste, versagt jedoch bei dem massigen Spiegel des Wasserdampf Radiometers. Gegenwärtig dauert eine Spiegelbewegung vom Referenz- zum Signalwinkel etwas mehr als 2 Sekunden. Bei einer Sekunde effektiver Meßzeit und zwei Spiegelbewegungen bedeutet dieses, daß mehr als 80% der gesamten Zeit durch die Spiegelbewegungen verbraucht werden. Im Rahmen der Konstruktion des RAMAS Gerätes wird ein neues Spiegelsteuerungssystem entwickelt, welches letztendlich auch beim Wasserdampf Radiometer angewendet werden sollte. Zusätzlich könnten durch Einführung eines verbesserten Meßschemas in der Steuerung des Radiometers die notwendigen Spiegelstellzeiten minimiert werden.

Wie in Abschnitt 6.3 ausführlich dargestellt, blieben die zahlreichen Versuche die übrig gebliebenen Stehwellen des Wasserdampfradiometers zu identi-

fizieren erfolglos. Zwar konnte durch den Einsatz mehrerer Isolatoren die Baseline für Totalpower Messungen ausreichend verbessert werden, doch gibt es hier noch einiges zu tun. So lange die 0,58 GHz Stehwelle vorhanden ist, bleibt eine Auswertung der Wasserdampfspektren schwierig. Gegebenenfalls bringen Tests mit der für das Mérida Radiometer gebauten 22 GHz Hornantenne neue Erkenntnisse.

Abschließend bleibt zum Wasserdampf Radiometer noch zu sagen, daß das Hauptproblem das Fehlen von Vergleichsmessungen ist. So lange das Gerät nicht ausreichend validiert ist, führen alle möglichen Verbesserungen nur zu qualitativen Aussagen. Gegebenenfalls ergibt sich im Rahmen der SCIAMACHY Validation eine Möglichkeit zum Vergleich mit anderen Meßgeräten.

In einem IUP Projekts mit dem Titel PALEOZONE-II soll der Einfluß der Änderungen des irdischen Magnetfeldes auf die chemische Zusammensetzung der oberen Stratosphäre beziehungsweise der Mesosphäre untersucht werden. Im Rahmen dieses Projektes könnte das RAM mit einer Filterbank erweitert werden – eine Filterbank ist eine Art Spektrometer mit wenigen, dafür aber spektral hoch aufgelösten Kanälen. Durch die geplante 150 kHz Filterbank könnte die maximale Beobachtungshöhe von jetzt etwa 55 auf dann 80 km erhöht werden. Dieses hätte Vorteile bei allen drei beobachteten Spezies, würde aber gerade beim Wasserdampf mit seiner im Spektrum stark ausgeprägten stratosphärischen Linie interessante Möglichkeiten bieten.

Die in Abschnitt 3.3 gezeigten Untersuchungen verschiedener Standorte auf ihre Tauglichkeit hin für ein neues 278 GHz Radiometer führte zu dem Ergebnis, daß Summit auf dem grönländischen Zentralplateau perfekt geeignet ist – zur genauen Lage von Summit siehe auch Abbildung 10.1. Während des ganzen Jahres sollten die dort vorhandenen atmosphärischen Bedingungen die Beobachtung der Chlormonoxid Spurengaslinie ermöglichen, während sich der Standort im polaren Winter zudem an zahlreichen Tagen innerhalb des vom Polarwirbel bedeckten Gebietes befindet. Zudem bietet der Ort aufgrund der dort vorhandenen amerikanischen Forschungsstation eine ausgezeichnete Logistik, die der von Ny-Ålesund nahe kommt. Aus diesem Grund startete das Institut für Umweltp Physik im August 2001 das Projekt »Radiometer for Atmospheric Measurements at Summit« (Abgekürzt RAMAS). Mit internationaler Beteiligung von Partnern aus Dänemark, England, Frankreich und den Vereinigten Staaten von Amerika soll im Sommer 2003 in Summit ein Mikrowellenradiometer aufgestellt werden.

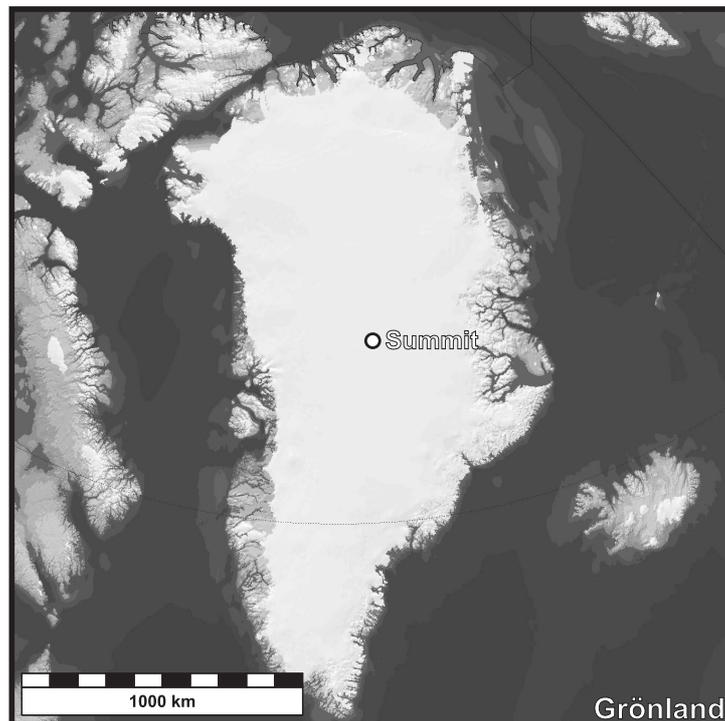


Abbildung 10.1: Eine Landkarte von Grönland mit Summit im Zentrum; die von den USA verwaltete Forschungsstation befindet sich bei  $72^\circ$  Nord und  $38^\circ$  West auf etwa 3.200 Metern Höhe. Karte aus dem Encarta Weltatlas (1999).

Das RAMAS wird in einem isolierten Standardcontainer installiert und ist damit weitestgehend unabhängig von der lokalen Infrastruktur. So kann das Gerät nach Ablauf der Projektlaufzeit gegebenenfalls an einem anderen Standort aufgestellt werden.

Der von der Universität Köln in der »Arbeitsgruppe für supraleitende Detektoren und Mischer« gebaute Mischer wird eine SIS Diode besitzen, die bei etwa 4 K Betriebstemperatur eine Einseitenband Systemrauschtemperatur von unter 400 K erwarten läßt. Das Gerät wird in einem Frequenzbereich von 265 bis 281 GHz mit einem frei verschiebbaren Beobachtungsfenster von 1,9 GHz Bandbreite arbeiten – in dem beobachteten Frequenzbereich befinden sich neben Chlormonoxid auch noch Ozon,  $N_2O$  (Di-Stickstoffoxyd, Lachgas) und  $HNO_3$  (Salpetersäure) sowie einige kleinere Spurengaslinien wie  $H_2O_2$ , HCN,  $HO_2$  und  $SO_2$ . Erwartet werden Spurengasprofile aus einem Höhenbereich von 15 bis 50 km. In seinen Spezifikation wird das RAMAS Gerät eines der besten

bodengebundenen Mikrowellenmeßgeräte zur Untersuchung der Stratosphäre werden.

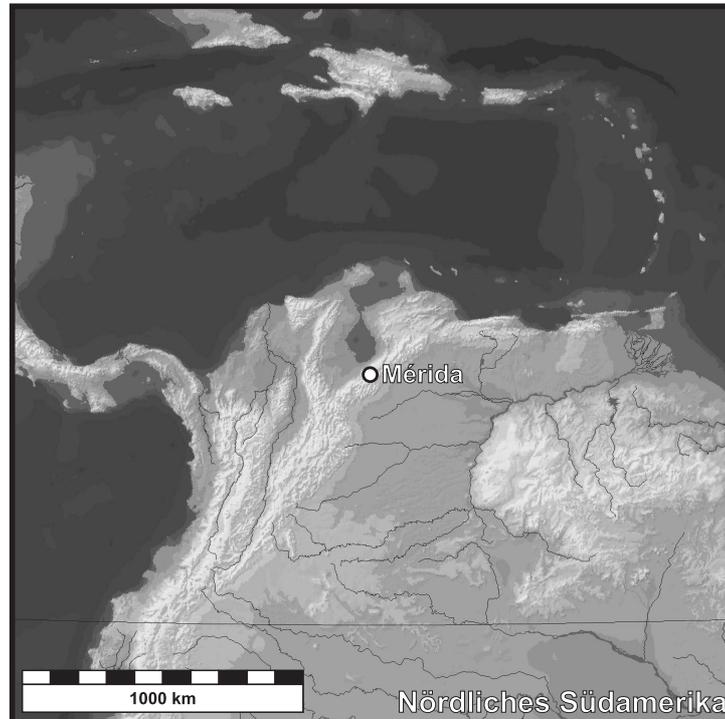


Abbildung 10.2: Eine Landkarte des nördlichen Südamerika; die in Venezuela liegende Stadt Mérida befindet sich bei 8° Nord und 71° West in den nördlichen Ausläufern der Anden. Die Forschungsstation liegt auf 4.775 Metern Höhe auf dem Pico Espejo (Spiegelspitze) und ist von Mérida aus über eine Strecke von vier Seilbahnen zu erreichen. Karte aus dem Encarta Weltatlas (1999).

Neben Summit zeigte in der vorgenommenen Untersuchung auch Mérida seine Tauglichkeit als Standort für ein 278 GHz Radiometer – siehe zur Lage von Mérida die Abbildung 10.2. In Kooperation mit der »Universidad de los Andes« in Mérida und dem Institut für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrum Karlsruhe wurde daher das Projekt der »Mérida Atmospheric Research Station« (abgekürzt MARS) ins Leben gerufen. Auf dem nahegelegenen Pico Espejo, in 4.775 Metern Höhe befindet sich ein Gebäude, in dem die venezolanische Luftwaffe früher eine Wetterstation betrieb. Dieses Gebäude soll nach einem Umbau ab Anfang des Jahres 2002 das MARS Radiometer beherbergen.

Bei dem neuen MARS Radiometer handelt es sich um das MIRA-2 Gerät

(Abkürzung für »Millimeterwellen Radiometer 2«) aus Karlsruhe, das durch unsere Arbeitsgruppe um ein 22 GHz Wasserdampf Frontend erweitert wird. Das MIRA-2 mißt in einem Frequenzbereich von 268 bis 280 GHz Spezies wie Ozon, Chlormonoxid, Salpetersäure und Di-Stickstoffoxyd – für einen genauen Überblick über MIRA-2 sei an dieser Stelle auf die Arbeiten von Krupa (1997) und Kopp (2000) verwiesen. Da sich das neue 22 GHz Radiometer oberhalb des Großteils des troposphärischen Wasserdampfes befindet, sollten die Ergebnisse weitaus besser sein als bei unserem 22 GHz Radiometer in Ny-Ålesund. Die Auswertung der gesamten MARS Daten wird durch die RAM Arbeitsgruppe erfolgen, wobei die Ergebnisse ebenfalls zur Validation des SCIAMACHY Instruments verwendet werden sollen.

Neben dem Radiometer soll in Mérida wie auch in Grönland DOAS Geräte unseres Instituts installiert werden. Mit ihnen lassen sich Säulen von Spurengasen wie zum Beispiel Ozon, NO<sub>2</sub> oder OCIO bestimmen. Das Alfred-Wegener-Institut für Polar und Meeresforschung wird zudem in der Nähe von Mérida auf 3.600 Metern Höhe in einem Gebäude des »Instituto Astrofisico« ein FTIR (für »Fourier-Transform Interferometer«), ein LIDAR (für »Light Detection and Ranging«) und ein UV-A/B Spektrometer stationieren. Für die nähere Zukunft ist geplant, daß MARS eine primäre NDSC Station für den nur ungenügend abgedeckten Äquatorialbereich der Erde wird.



# Anhang



# A Programme der Auswertung

## Vorbemerkungen

Die Auswertung findet in der mathematischen Interpretersprache »Matlab« der Firma »Mathworks« statt – zur Ausführung wird daher ein installierter Matlab Interpreter benötigt. Matlab wurde gewählt, da die Programme ohne Änderungen sowohl auf Windows und auf Linux lauffähig sind. Matlab besitzt zudem zahlreiche Funktionen für die direkte Verarbeitung von Daten, die in Matrizen- und Vektorform vorliegen; dadurch bleibt die Struktur der zugrundeliegenden Mathematik auch im Programmtext erhalten, was die Programmpflege und -erweiterung vereinfacht.

Im Folgenden sind alle Programme aufgelistet, die für den Weg einer Auswertung von den Rohdaten bis hin zu den Profilen ausgeführt werden müssen. Die einzelnen Programme benötigen oftmals weitere Unterprogramme, die im Pfad des Interpreters eingetragen sein müssen, hier aber nicht weiter beschrieben werden sollen.

Von einigen Programmen stehen jeweils zwei Versionen zur Verfügung. Die Version mit dem Präfix »Bat« behandelt alle oder eine zeitlich begrenzbare Auswahl von Dateien innerhalb eines Verzeichnisses oder Verzeichnisbaumes. Sie arbeitet üblicherweise als Frontend für die Version ohne Präfix, die immer nur auf eine einzelne Datei angewendet werden kann.

Die genauen Aufrufparameter können mit der Matlab Funktion `help` direkt von den Programmen erfragt werden, daher folgt hier nur eine allgemeine Beschreibung der Vorgehensweise. Für tiefere Einblicke sei zudem auf die im Programmtext eingebetteten Kommentare verwiesen. Eine Beschreibung der mathematischen Grundlagen finden sich in den Kapiteln 5 und 4, die in den Programmen angewandten Vorgehensweisen werden in den Kapiteln 7 und 8 ausführlich vorgestellt.

## Allgemeine Hilfsprogramme

Das in C-PlusPlus geschriebene Programm `CopyCD` kann Wasserdampf- und Chlormonoxid-Daten die im bis zum Spätsommer 2000 gültigen Datenformat des Meßprogrammes `MControl` vorliegen in das aktuelle MCP-Datenformat konvertieren. Im Rahmen dieser Arbeit sind alle vorhandenen Datensätze von 1997 bis 2000 umgewandelt worden.

Das vom Meßprogramm MCP erzeugte Datenformat ist eine Kombination aus miteinander verknüpften ASCII und Binärdateien, wobei die Informationen für jeweils einen Frame in mehreren Dateien zu finden sind. Die Programme `BatMCP2MAT` und `MCP2MAT` wandeln diese Daten in ein für Matlab leichter verarbeitbares binäres MAT-Datenformat um – jede der erzeugten Dateien beinhaltet dann die Daten einer ganzen Messung. Eine Beschreibung der beiden Datenformate kann der internen Dokumentation des Meßprogramms MCP beziehungsweise des Konverters `MCP2MAT` entnommen werden.

Die aus Kammgeneratormessungen erzeugten Frequenzkalibrationsdateien liegen üblicherweise in einem ASCII Format vor und können von Matlab nicht direkt verarbeitet werden. Das Programm `FRQ2MAT` wandelt die Dateien in ein für die Auswertung lesbares MAT-Datenformat um.

## Programme der Chlormonoxid Auswertung

Alle Programme der Chlormonoxid Auswertung sind mit dem Präfix `CLO_` versehen, das aus Gründen der Übersichtlichkeit im Folgenden weggelassen wird.

Das Programm `BatCalInt` erzeugt aus den Dateien der täglich durchgeführten Messungen von interner und externer kalter Kalibrationslast eine Datei Namens `CalIntCLO.mat`. Mit den Informationen dieser Datei kann in der späteren Auswertung optional eine Temperaturkalibration der internen kalten Last vorgenommen werden.

Mit den Programmen `BatIntSpek` und `IntSpek` werden die Spektren einer Messung zusammengefaßt (integriert). Aus den Spektren der jeweiligen Meßphasen werden dabei Differenzspektren berechnet, abhängig von der Winkelvariation innerhalb eines Frames und der Variation der Leistung des Diffe-

renzspektrums werden einzelne Spektren aussortiert. In einem weiteren Schritt werden alle Spektren auf einen gemeinsamen Signalwinkel von  $90^\circ$  (Zenit) umgerechnet.

Das Programm `BatFrqCal` fügt zur Vereinfachung der folgenden Auswertungsschritte Informationen der Frequenzkalibration in die Dateien mit den integrierten Spektren ein.

Tabelle A.1: Die Schritte und Programme der Chlormonoxid Auswertung und ihre Ergebnisse.

Schritt	Programm(e)	Ergebnis
0	Originaldaten im MCP-Datenformat	Präfix NCM
1	<code>BatIntSpek</code> und <code>IntSpek</code>	Präfix CIS
2	<code>BatFrqCal</code>	Präfix FCIS
3a	<code>BatMakeDN</code>	Tag- und Nachtlisten
3b	<code>BatDayNightDiff</code> und <code>DayNightDiff</code>	Präfix CDND
4a	<code>Spek2Prof</code>	Spurengasprofile
4b	<code>invert_clo</code>	

Wie in Abschnitt 7.1 beschrieben werden mit den Spektren der einzelnen Tage Tag-Nacht Differenzen gebildet in denen die Geräteinflüsse minimiert sind. Mit dem Programm `BatMakeDN` wird aus der Gesamtheit der Messungen für jeden Tag jeweils eine Liste mit Tag- und Nachtmessungen erzeugt, die den Anforderungen an Sonnenauf und Untergang sowie Ausschlußzeiten genügen. Mit den Programmen `BatCheckDN` und `CompareDN` können diese Listen manuell überprüft werden, so daß Spektren von schlechter Datenqualität identifiziert und aus den Listen gelöscht werden können.

Die Programme `BatDayNightDiff` und `DayNightDiff` dienen zur Bildung der Tag-Minus-Nacht Differenzen, wie in Abschnitt 7.1 beschrieben. Sie benötigen die entsprechenden Tag und Nacht Listendateien.

Mit dem Programm `Spek2Prof` wird schließlich das Retrieval gemäß der OEM (mit dem Gauss-Newton Verfahren) durchgeführt. Es ist ein Frontend für `invert_clo` von Ingo Wohltmann, mit dem die eigentliche Inversion durchgeführt wird.

In Tabelle A.1 sind alle Schritte der Chlormonoxid Auswertung noch einmal zusammengefaßt. Jeder Auswertungsschritt läßt die bisherigen Daten unangetastet und erzeugt als Zwischenergebnis einen neuen Datensatz mit entsprechendem Präfix zur Identifizierung.

## Programme der Wasserdampf Auswertung

Alle Programme der Wasserdampf Auswertung sind mit dem Präfix H2O\_ versehen, das aus Gründen der Übersichtlichkeit im Folgenden weggelassen wird.

In der editierbaren ASCII Datei `h2oplexi.idx` sind Informationen über die Zeitpunkte an denen die Plexiglasplatten gewechselt wurden zusammengefaßt – diese Informationen müssen aus den Kalibrationsprotokollen manuell übertragen werden. Das Hilfsprogramm `MakePlexiList` erzeugt aus `h2oplexi.idx` eine von der Auswertung lesbare Datei `h2oplexi.mat`.

Im Gegensatz zur Chlormonoxid Auswertung findet die Systemeichung nicht vor jeder Messung, sondern nur einmal am Tag statt. Für jeden Tag gibt es damit Dateien der Systemeichung aus denen mit Hilfe des Programmes `BatMakeSNTList` eine von der Auswertung lesbare Matlab Datei erzeugt wird.

Das Programm `BatAddInfo` fügt den Dateien der Messungen Informationen wie zum Beispiel die zum Zeitpunkt der Messung verwendeten Plexiglasplatten oder die zeitlich nächste Systemeichung hinzu. Zusätzlich werden mit ihm die Frequenzzeichnungen durchgeführt sowie einige statistische Daten erzeugt, die in der folgenden Auswertung noch benötigt werden.

In dem Programm `BatIntSpek` findet die Leistungskalibration und Zusammenfassung der Spektren eines Tages statt. Dabei werden einige Fehler in den Messungen korrigiert sowie Frames unter Beachtung mehrerer Ausschlußkriterien wie zum Beispiel der Winkelvariation innerhalb eines Frames oder der Variation der Leistung des Differenzspektrums verworfen. Das Programm kennt mehrere Modi für die Leistungskalibration und die Art der Zusammenfassung.

Abschließend wird mit dem Programm `Spek2Prof` die Inversion von Referenzstrahlspektren gemäß der OEM (mit dem Levenberg-Marquardt Verfahren) durchgeführt.

Neben der Referenzstrahl-Methode wurde testweise auch die Totalpower-Methode zur Aufzeichnung von Wasserdampf Spektren verwendet. Zur Erzeugung der Totalpower Spektren kann das Programm `BatIntSpekTP` verwendet werden; das Programm `Spek2ProfTP` führt mit den Spektren die Inversion gemäß der OEM durch.

In Tabelle A.2 sind alle Schritte der Wasserdampf Auswertung noch einmal zusammengefaßt. Jede Schritt läßt die bisherigen Daten unangetastet und er-

Tabelle A.2: Die Schritte und Programme der Wasserdampf Auswertung und ihre Ergebnisse.

Schritt	Programm(e)	Ergebnis
0	Referenzstrahlungsmessungen im MCP-Datenformat	Präfix NWM
1	BatAddInfo	Präfix ANWM
2	BatIntSpek	Präfix WIS
3	Spek2Prof	Spurengasprofile
0	Totalpowermessungen im MCP-Datenformat	Präfix NWT
2	BatIntSpekTP	Präfix WIST
3	Spek2ProfTP	Spurengasprofile

zeugt als Zwischenergebnis einen neuen Datensatz mit entsprechendem Präfix zur Identifizierung.



## B Spezielle Problemlösungen

### Bestimmung der troposphärischen Opazität

Für die Bestimmung kalibrierter Spektren gemäß der Referenzstrahl Methode wird wie in Abschnitt 4.5 beschrieben sowohl die Zenitopazität  $\tau_z$  als auch die Kontinuums Helligkeitstemperatur  $T_{\text{Kontinuum}}$  der Troposphäre benötigt. Beides läßt sich bei diesem Verfahren nicht direkt messen, kann jedoch für Chlormonoxid gemäß der im Folgenden beschriebenen Vorgehensweise nachträglich bestimmt werden.

Der troposphärische Kontinuumsbeitrag des Signalstrahles  $T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Sig}}$  setzt sich zusammen aus dem durch die Transmission des Styroporfensters  $Tr_F$  abgeschwächten Beitrag der Troposphäre entsprechend deren Temperatur  $T_{\text{Tropo}}$  und Opazität  $\tau_z$  sowie einem temperaturabhängigen Emissionsbeitrag des Fensters  $Em_F$  selbst:

$$T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Sig}} = Tr_F \cdot T_{\text{Tropo}} \cdot (1 - e^{-A_{\text{ST}} \cdot \tau_z}) + Em_F \quad (\text{B.1})$$

Die Emission des Fensters ergibt sich aus der Transmission zu:

$$Em_F = T_{\text{Fenster}} \cdot (1 - Tr_F) \quad \text{mit} \quad T_{\text{Fenster}} \approx \frac{T_{\text{Innen}} + T_{\text{Aussen}}}{2} \quad (\text{B.2})$$

Der Beitrag des Referenzstrahles  $T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Ref}}$  besitzt ebenfalls einen troposphärischen Anteil, der zusätzlich aber noch durch die Plexiglasplatte mit der Opazität  $\tau_d$  abgeschwächt wird, einen Anteil durch die Emission des Fensters der ebenfalls durch die Plexiglasplatte abgeschwächt wird sowie einen Anteil durch die thermische Eigenemission der Plexiglasplatte selbst:

$$\begin{aligned} T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Ref}} = & T_{\text{Tropo}} \cdot (1 - e^{-A_{\text{RT}} \cdot \tau_z}) \cdot Tr_F \cdot e^{-\tau_d} \\ & + Em_F \cdot e^{-\tau_d} \\ & + T_{\text{Warm}} \cdot (1 - e^{-\tau_d}). \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

Abgesehen von  $\tau_z$  sind alle Parameter in den Gleichungen (B.1) und (B.3)

bekannt. Aus dem Referenzstrahl Meßverfahren ergibt sich, daß in den beiden Strahlen die gleichen Helligkeitstemperaturen gemessen werden sollten:

$$T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Sig}} = T_{\text{Kontinuum}}^{\text{Ref}} = T_{\text{Kontinuum}}. \quad (\text{B.4})$$

Durch geeignete Wahl von  $\tau_z$ , was mittels eines einfachen iterativen Verfahrens zu realisieren ist, kann dieses gewährleistet werden.

Bei einer unveränderten Plexiglas Platte und einer weitestgehend konstant bleibenden Raumtemperatur sollte sich für jeden Wert des Signalwinkels ein bestimmter Wert für  $\tau_z$  ergeben.

## Bestimmung des optimalen Signalwinkels

Damit Gleichung (4.16) gilt und somit die Referenzstrahl Methode angewendet werden darf, müssen die mit dem Spektrometer gemessenen Leistungen in Referenz- und Signalstrahlrichtung auf den gleichen Wert eingestellt werden.

Der Signalstrahl legt einen längeren Weg durch die Atmosphäre zurück; zum Ausgleich befindet sich im Referenzstrahl eine Plexiglas Platte deren Absorption das atmosphärische Signal abschwächt, gleichzeitig aber selbst breitbandig thermisch emittiert. Wie in Abbildung 4.3 zu erkennen ist findet sich zu der Leistung des Referenzstrahles eine entsprechende Leistung für den Signalstrahl und damit wiederum ein passender Signalwinkel.

Aufgrund von Variationen des Wetters und der damit veränderlichen troposphärischen Transmission sowie der jeweils an das Wetter angepaßten Plexiglas Plattendicke muß zu jedem Referenzstrahl ein neuer, passender Signalstrahl mit dem zugehörigen Winkel gesucht werden.

Zur Vereinfachung der Winkelsuche findet am Anfang jedes Frames eine Sky-Dip Messung statt. Dabei werden über den erlaubten Bereich des Signalwinkels äquidistante Winkelpositionen verteilt, an denen jeweils Messungen der mittleren Kanal-Zählraten (entspricht der Leistung) durchgeführt werden. Üblicherweise wird dafür ein Bereich von 200 Kanälen im Zentrum des AOS-Spektrums herangezogen. Es ergibt sich dabei eine mit dem Winkel monoton abfallende Kurve. Die Anzahl der Winkelpositionen hängt von der Spezies ab und muß so gewählt werden, daß die Kurve im Rahmen von Zählrate und Schwankungen durch Meßrauschen von Winkel zu Winkel ohne Ausnahme

monoton fällt – bei der Wasserdampfmessung werden dazu 16 Winkelpositionen verwendet, bei der empfindlicheren Chlormonoxidmessung können nur 8 Winkelpositionen verwendet werden.

Nach jedem Zyklus wird die zugehörige mittlere Zählrate des Referenzstrahles neu berechnet und durch Vergleich mit den Sky-Dip Messungen ein passender Signalwinkel für den nächsten Zyklus bestimmt. Dabei wird zwischen den einzelnen Winkeln linear interpoliert. Dieses führt dazu, daß der gefundene Winkel den tatsächlichen Winkel überschätzt; im Rahmen der Stellgenauigkeit von  $0,09^\circ$  sollte das aber keine Rolle spielen.

Bei jedem neue Signalwinkel wird geprüft, ob dieser sich über eine gesetzte Schranke hinweg vom zuvor verwendeten Signalwinkel entfernt hat. Das würde auf eine starke Variation der Troposphäre hindeuten und bewirkt im Meßprogramm einen neuen Sky-Dip oder den Abbruch der Messung.

Die Sky-Dip Daten werden getrennt von den eigentlichen Referenzstrahl Meßdaten abgespeichert und archiviert. Gegenwärtig werden sie nicht weiter verwendet. Man könnte sich allerdings überlegen, ob man sie nicht innerhalb eines Totalpower Verfahrens für eine genauere Bestimmung der troposphärischen Opazität heranzieht.

Abbildung B.1 zeigt den Erfolg des neuen Steuerungsprogrammes. Aufgetragen sind dazu für alle Wasserdampf Frames zwischen Januar 1999 und Juli 2001 die Standardabweichungen vom mittleren Signalwinkel (oben) sowie die Variationen des aus Signal- und Referenzmessung gebildeten Differenzspektrums (unten, der Mittelwert der Kanäle 900 bis 1100 als Betrag und Standardabweichung vom optimalen Ausgleich mit 0 K). Bis Anfang August 2000 war das alte Steuerungsprogramm MControl in Benutzung, das eine einfachere Methodik zur Bestimmung des Signalwinkels verwendete. In einer Übergangszeit bis Februar 2001 wurden verschiedene Testversionen, danach die endgültige Version von MCP verwendet. Man erkennt deutlich, daß seit der Einführung der letzten Version von MCP sowohl der Signalwinkel stabiler ist, als auch ein besserer Abgleich zwischen Signal- und Referenzstrahl erreicht wird. Das gleiche Ergebnis zeigt sich so auch bei den Chlormonoxid Messungen.

## Anpassung des Schaltbaren Abschwächers

Das verwendete Spektrometer besitzt eine Aussteuerungsdynamik von 12 Bit was einem Wertebereich für die Zählrate von 1 bis 4096 entspricht. Wie in Abbildung B.2 dargestellt werden vom Radiometer zwei Arten von Signalen aufgezeichnet.

Links das Spektrum einer Messung, wobei es abgesehen von der Leistung und damit der Aussteuerung des Signales keinen strukturellen Unterschied zwischen der Messung von warmer und kalter Last oder einer Atmosphärenmessung gibt – die Baseline mit ihrem Maximum um Kanal 400 ist deutlich erkennbar. Das Spektrum einer Kammgenerator Messung ist rechts dargestellt; die einzelnen Signalspitzen befinden sich in einem Abstand von 100 MHz die Baseline läßt sich aber auch hier erkennen.

Durch einen umschaltbaren Abschwächer kann die Leistung des Signales in 1 dB Schritten angepaßt werden. Optimal ist das Signal ausgesteuert, wenn kein Spektrometerkanal eine Zählrate von mehr als 90% (die obere Schranke) beziehungsweise wenn die maximalen Zählraten im Spektrum nicht unter 70% (die untere Schranke) der maximalen Aussteuerung liegen. Ersteres könnte bei ungünstigen Witterungsbedingungen zu einer ungewollten Übersteuerung des Signales führen; letzteres ist sinnvoll da bei einer zu großen Signaldämpfung das Signal zu Rauschverhältnis (englisch »Signal to Noise Ratio«, abgekürzt mit SNR) ungünstiger wird.

Im Meßprogramm ist dieses derart geregelt, daß abhängig von der Art der Messung festgelegt werden kann, wieviele Kanäle maximal über der oberen Schranke liegen dürfen, beziehungsweise wieviele Kanäle minimal über der unteren Schranke liegen sollen. Bei Kammgeneratormessungen sollte sich genau ein Kanal zwischen oberer und unterer Schranke befinden dürfen; bei allen anderen Messungen hat sich ein Wert von 10 Kanälen als brauchbar erwiesen.

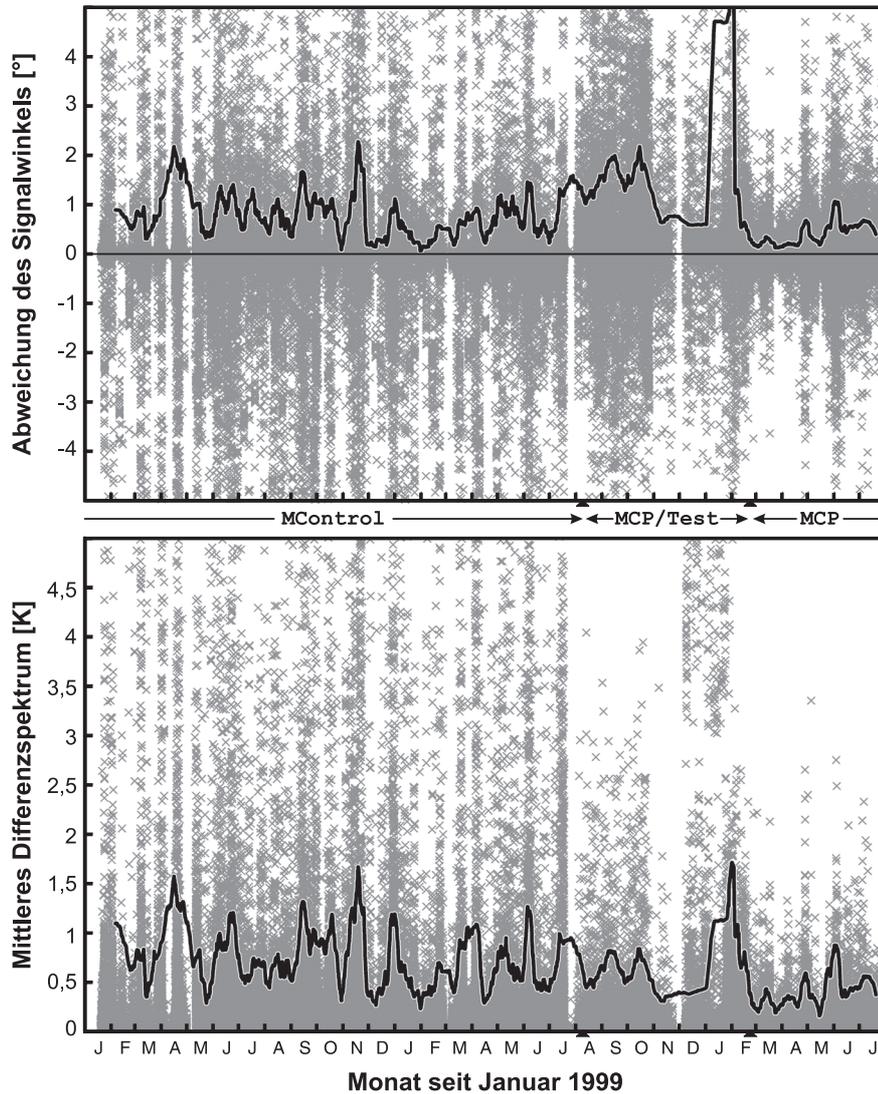


Abbildung B.1: Im oberen Feld sind als graue Kreuze die Standardabweichungen vom mittleren Signalwinkel innerhalb eines Frames aufgetragen, sowie als schwarze Kurve der Betrag des Mittelwertes dazu (gleitend über jeweils 2000 Frames). Eine kleine Standardabweichung bedeutet, daß der Signalwinkel während einer Messung stabiler war, was von Vorteil bei der Zusammenfassung der Meßdaten ist. Im unteren Feld sind als graue Kreuze der Mittelwert der Kanäle 900 bis 1100 des Differenzspektrums aufgetragen, sowie als schwarze Kurve die Standardabweichung dazu (gleitend über jeweils 2000 Frames). Ein kleinerer Wert besagt, daß der Signalstrahl besser an den Referenzstrahl angepaßt wurde, was eine Voraussetzung für die Verwendung der Referenzstrahl Methode ist. Als Daten wurden circa 160.000 Wasserdampfmessungen zwischen Januar 1999 und Juli 2001 verwendet.

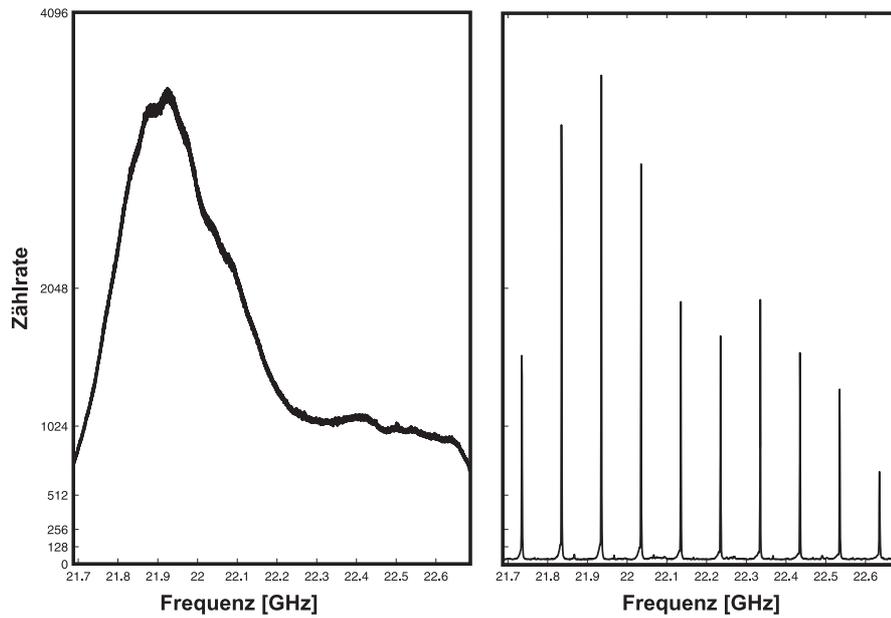


Abbildung B.2: Beispielhaft, links das Spektrum einer Atmosphärenmessung und rechts eine Kammgeneratormessung. Die Baseline mit ihrem Maximum im Bereich von Kanal 400 ist bei beiden Messungen deutlich zu erkennen.

## C Spektroskopische Parameter

Informationen zur Druckverschiebung für die 22 GHz Wasserdampflinie sind in der Literatur sehr rar. Bei Liebe und Dillon (1968) sowie Mrowinski (1970) finden sich Werte für eine Eigen-Druckverschiebung in einer Größenordnung von 1,38 MHz/torr (entspricht 1,04 MHz/hPa) beziehungsweise 1,2 MHz/torr (entspricht 0,9 MHz/hPa); in neueren Modellen von Liebe (1989) entfällt die Druckverschiebung ( $\delta=0$ ). Da das Wasserdampf VMR mit der Höhe exponentiell abfällt wirkt sich diese ohnehin nur in niedrigen Höhenschichten aus, so daß sie für die in dieser Arbeit durchgeführten Mikrowellenmessungen vernachlässigbar sind.

Tabelle C.1: Die spektroskopischen Parameter für die 22 GHz Wasserdampf Rotationslinie. Die Daten finden sich in Anhängen zu Kapitel 2 von Janssen (1993), Liebe und Dillon (1968) sowie dem Spektrallinienkatalog HITRAN96.

Parameter			Wasserdampf
Frequenz	$\nu$	GHz	22,23508
Wellenlänge	$\lambda$	mm	13,5
Molekülmasse	$m$	u	18
Referenztemperatur	$T_0$	K	300
Freiheitsgrade des Moleküls	$m$		2,5
Druckverbreiterung	$\gamma$	MHz/hPa	2,81
Druckverbreiterung, Exponent	$\kappa$		0,69
Eigenverbreiterung	$\gamma_E$	MHz/hPa	13,20
Eigenverbreiterung, Exponent	$\kappa_E$		1
Eigen-Druckverschiebung	$\delta$	MHz/hPa	-1,04
Linienstärke	$S'$	cm <sup>2</sup> Hz	$0,1272 \cdot 10^{-13}$
Linienstärkeparameter	$b$		2,143
Vibrations Fundamentalmoden	$T_{vib}$	K	2294, 5262, 5404
Vibrations Entartungsgrad	$d_v$		1,1,1

Tabelle C.2: Die spektroskopischen Parameter für die 204 GHz Chlormonoxid Rotationslinie. Im verwendeten Vorwärtsmodell werden insgesamt neun Chlormonoxid Linien aus dem Frequenzbereich um 204 GHz angepaßt, hier angegeben sind die Parameter für die stärkste Linie. Die Daten finden sich in den Anhängen zu Kapitel 2 von Janssen (1993).

Parameter			Chlormonoxid
Frequenz	$\nu$	GHz	204.3519
Wellenlänge	$\lambda$	mm	1,5
Molekülmasse	$m$	u	51
Referenztemperatur	$T_0$	K	300
Freiheitsgrade des Moleküls	$m$		2
Druckverbreiterung	$\gamma$	MHz/hPa	$3,49 \cdot 10^{-3}$
Druckverbreiterung, Exponent	$\kappa$		0,75
Linienstärke	$S'$	$\text{cm}^2\text{Hz}$	$0,1262 \cdot 10^{-10}$
Linienstärkeparameter	$b$		0,084
Elektronische Fundamentalmode	$T_{el}$	K	458
Vibrations Fundamentalmode	$T_{vib}$	K	1212
Vibrations Entartungsgrad	$d_\nu$		1

## D Technische Daten

Tabelle D.1: Eine Übersicht der verschiedenen technischen Daten des Chlormonoxid- und Wasserdampfradiometers auf dem Stand vom Sommer 2001.

Parameter	Wasserdampf	Chlormonoxid
Frequenz	22,23508 GHz	204,3519 GHz
Wellenlänge	13,5 mm	1,5 mm
Typische Signalstärke	230 mK	50 mK
Dauer einer Messung	90 min	60 min
Typische Integrationszeit	6 h	24 h
Öffnungswinkel im Fernfeld	6°	1,6°
Erster Verstärker	FET	HEMT
Empfängertemperatur	Umgebung	13 K
Systemrauschtemperatur SSB	230 K	770 K
Lokaloszillator	Phase-Locked	Gunn
Lokaloszillator einkopplung	Elektronisch	Quasioptisch
Lokaloszillator Frequenz	14,235 GHz	196,352 GHz
Zwischenfrequenz	8 GHz	8 GHz
Seitenband	Oberes	Oberes
Seitenbandfilterung	Koaxial	Martin-Puplett
Höhenbereich	25 bis 55 km	16 bis 45 km
Optimale Beobachtungshöhe	30 km	20 km
Höhenauflösung	15 km	10 km
Winkelgenauigkeit Stellmotor	0,09°	0,09°
Winkelstellzeiten Sig-Ref	2,5 s	0,8 s
Transmission des Fensters	99,9%	98,5%
Transmission des Plexiglases	85% bis 95%	65%
In Betriebnahme	1999	1994

Tabelle D.2: Eine Übersicht der verschiedenen technischen Daten des gegenwärtig verwendeten Spektrometers.

Parameter	Wert
Typ	Akusto-Optisch
Hersteller	Radiometer Physics GmbH
Eingangsleistung	0 dBm bei 2,1 GHz
Eingangsfrequenz	2,1 GHz
Laser	Halbleiter 780 nm
Bragg-Zelle	LiNbO <sub>3</sub>
Übliche Auslesezeit	25 × 40 ms = 1 s
CDD-Zeile/Kanäle	1728
Aussteuerungs Bereich	12 Bit = 4096 Counts
Dynamik Bereich	30 dB
Optimale Bandbreite	1 GHz
Effektive Bandbreite	960 MHz
Optimale Frequenzauflösung	0,6 MHz
Effektive Frequenzauflösung	1,3 MHz

Tabelle D.3: Zeitpunkte an denen am RAM (Wasserdampf und Chlormonoxid Frontend) technischen Änderungen durchgeführt wurden

Datum	Gerät	Änderung
07/01/1999	CIO	Mylarfenster durch Polystyrolfenster (PSF und PSF/B) ersetzt
27/04/1999	H2O	Isolator (ISO1) eingebaut
09/07/1999	H2O	Isolator (ISO2) eingebaut
24/01/2000	CIO	Polarisationsgitter (PG) eingebaut
	H2O	Kammgenerator Abschirmung eingebaut
03/08/2000	CIO	Umbau des Weglängenmodulators
	Beide	Einbau neuer HF-Schalter

Tabelle D.4: Weglängen (L) und Winkel (A) in der Wasserdampf Quasioptik analog der Abbildung D.1.

Abk	Weglänge/Winkel/Strahlweite	Maß
L1	Hornantenne → Ellipsoidspiegel	350 mm
A1	Hornantenne ∠ Ellipsoidspiegel	35°
L2	Ellipsoidspiegel → Drehspiegel	810 mm
L3	Drehspiegel → Fenster bei 0° Elevation	310 mm

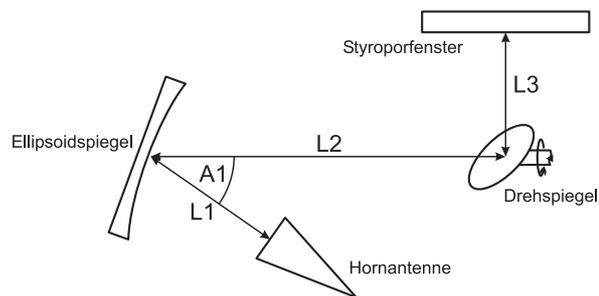


Abbildung D.1: Maße der Wasserdampf Quasioptik.

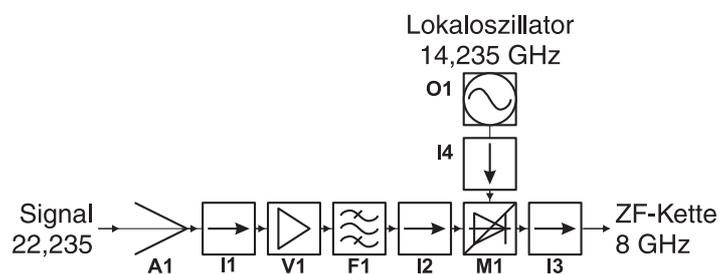


Abbildung D.2: Der elektronische Teil des Wasserdampf Radiometers.

Tabelle D.5: Die verschiedenen Bauelemente des Wasserdampf Radiometers gemäß Abbildung D.2.

Bauteil	Spezifikation
Hornantenne	A1 (Wellenleiter WR42)
Hersteller	Radiometer Physics GmbH
Öffnungswinkel, FWHM	10,395° FWHM
Aperturdurchmesser	108 mm
Gesamtlänge	234 mm
Isolator	I1 (Wellenleiter WR42)
Hersteller	Pamtech, Inc.
Modell	KYB2121
Mittelfrequenz	18 bis 26 GHz
Durchgangsverlust	0,2 dB Max
Isolation	25 dB Min
Rauscharmer Verstärker	V1 (WR42 auf SMA)
Hersteller	DBS Microwave Inc.
Modell	DS053897PNN
Mittelfrequenz	22235 MHz
Verstärkung	38 dB Min von 21235 bis 23235 MHz
Noise-Figure	1,9 dB Max
Bandpassfilter	F1 (SMA)
Hersteller	Daden-Anthony Associates Inc.
Modell	CS22235-2000-388
Mittelfrequenz	22235 MHz
Durchgangsverlust	1 dB Max
Bandbreite 3 dB	21235 bis 23235 MHz
Sperrverlust	40 dB Min von 15635 bis 27635 MHz
Isolator (Breitband)	I2 (SMA)
Hersteller	SMI
Modell	1826-1048
Mittelfrequenz	18,0 bis 26,5 GHz
Durchgangsverlust	0,6 dB max
Isolation	18 dB min
Triple Balance Mischer	M1 (SMA)
Hersteller	WJ, Inc.
Modell	MZ 5010C
RF/LO	2 bis 26 GHz
IF	1 bis 15 GHz

Tabelle D.5: Die verschiedenen Bauelemente des Wasserdampf Radiometers gemäß Abbildung D.2.

Bauteil	Spezifikation
Isolator/Zirkulator	I3 (SMA)
Hersteller	Telemeter Electronic GmbH
Modell	JCA79-223
Mittelfrequenz	8,0GHz
Durchgangsverlust	0,1 dB Max
Isolation	20 dB Min
Oszillator	O1 (SMA)
Hersteller	Miteq
Modell	LPLM-14235-D0-15P
Mittelfrequenz	14235 MHz
Ausgangsleistung	15,3 dBm Min
Isolator	I4 (SMA)
Hersteller	RYT Industries
Modell	2000-221
Mittelfrequenz	14 bis 16 GHz
Durchgangsverlust	0,3 dB Max
Isolation	26 dB Min

Tabelle D.6: Die zusätzlich gespeicherten Housekeeping-Daten werden entweder über einen Kanal der AD-Wandler Karte oder über die Chlormonoxid Unidex-Motorsteuereinheit eingelesen.

Meßwert	Typ	Info
Temperatur, Außen	PT100 Widerstand	ADC-02
Temperatur, Warm, ClO	PT100 Widerstand	ADC-03
Temperatur, Warm, Ozon	PT100 Widerstand	ADC-05
Temperatur, Intern, ClO	PT100 Widerstand	ADC-08
Temperatur, Intern, Ozon	PT100 Widerstand	ADC-01
Temperatur, Mischer, ClO	Diodenfühler	ADC-00
Temperatur, Mischer, Ozon	Diodenfühler	ADC-04
PLL Status, ClO	Spannung	ADC-07
PLL Status, Ozon	Spannung	ADC-06
Druck, Dewar, ClO	Druck-Meßkopf	UDX100/ClO
Druck, Dewar, Ozon	Druck-Meßkopf	UDX100/ClO

Tabelle D.7: Die Opazitäten und Transmissionen verschiedener Kombinationen von Plexiglas Platten (in den oberen Zeilen für Wasserdampf und in der letzten Zeile für Chlormonoxid) aus Testmessungen.

Dicke $d$	$\tau_D$	$Tr$
12	0,055	94,7%
15	0,062	93,9%
18	0,073	93,0%
19	0,075	92,8%
20	0,084	91,9%
22	0,090	91,4%
23	0,093	91,1%
24	0,097	90,8%
28	0,111	89,5%
32	0,125	88,3%
6	0,42	65,7%

Die Abhängigkeit der Opazität  $\tau_D$  von der Dicke  $d$  der verwendeten Plexiglas Platten ergibt sich für das Wasserdampf Radiometer mit hinreichender Genauigkeit durch folgende lineare Anpassung:

$$\tau_D = 0,0036 \times d + 0,0092. \quad (\text{D.1})$$

Die Transmissionsdaten wurden durch atmosphärische Messungen, jeweils mit und ohne Plexiglasplatten im Strahlengang bestimmt. Zur Berechnung wurde Gleichung (B.3) entsprechend modifiziert. Aufgrund der troposphärischen Variabilität sowie der nicht genau bekannten stratosphärischen und troposphärischen Temperaturen sind die Ergebnisse aber nur begrenzt vertrauenswürdig.

Es bieten sich jedoch auch zwei andere Meßverfahren an, die aber aufgrund des defekten Akustooptischen Spektrometers noch nicht getestet werden konnten. Am einfachsten ist eine Messung in die kalte Kalibrationslast, jeweils mit und ohne Plexiglas. Besser ist jedoch eine atmosphärische Totalpower Messung, wiederum mit und ohne Plexiglas. Für eine bessere Statistik sollte man sie an Tagen mit unterschiedlichen troposphärischen Opazitäten durchführen. Aus der Abschwächung der kalibrierten Spektren kann direkt auf die Transmissionseigenschaften des Plexiglasses geschlossen werden.

## E Symbole der Mikrowellenkomponenten

	Dachkantspiegel
	Ellipsoidspiegel
	Rotierender Spiegel
	Drahtgitter
	Absorber
	Hornantenne
	Mischer
	Lokaloszillator
	Verstärker
	Bandpassfilter
	Isolator

Abbildung E.1: Symbole der in dieser Arbeit verwendeten Mikrowellenkomponenten gemäß Vowinkel (1988). Es gibt keine einheitlich genormten Symbole nach DIN oder IEEE, so daß Hochfrequenz-Schaltungen je nach Artikel, Buch oder Sprachraum anders aussehen können.



## F Sonnenstandsdiagramm für Ny-Ålesund

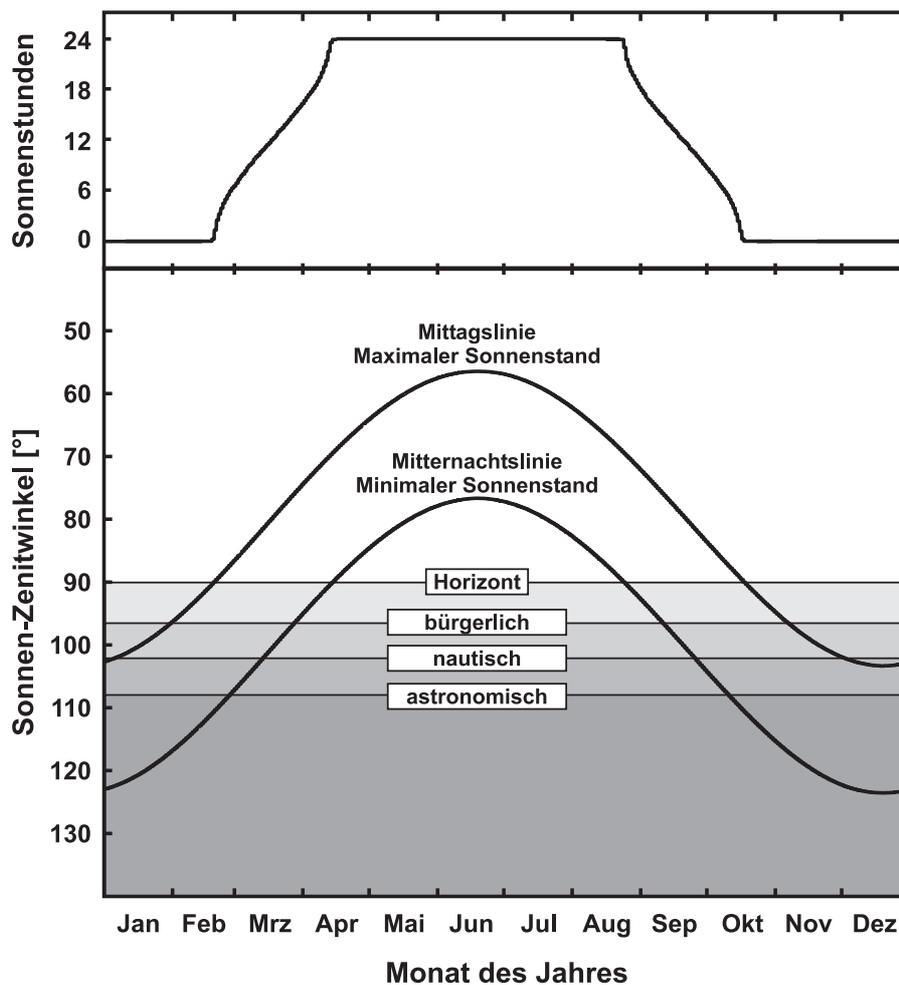


Abbildung F.1: Sonnenstandsdiagramm für Ny-Ålesund ( $79^\circ$  Nord,  $11^\circ$  Ost auf Meereshöhe). Im Oberen Feld ist die Anzahl der Stunden aufgetragen, bei denen sich die Sonne über dem Horizont befindet. Die Kurven im unteren Feld zeigen den maximalen und minimalen Sonnenstand des jeweiligen Tages.

Ein Sonnenstandsdiagramm, wie in Abbildung F.1 dargestellt, ist bei Messungen die jenseits eines Polarkreises stattfinden ein nützliches Hilfsmittel. Anhand des oberen Feldes der Abbildung läßt sich direkt ablesen, in welchen Monaten Polartag, beziehungsweise Polarnacht in Ny-Ålesund ist. An Dämmerungen für den Sonnenauf- beziehungsweise Sonnenuntergang gilt es drei verschiedene Definitionen zu unterscheiden. Die »bürgerliche Dämmerung« ist der Bereich zwischen dem Horizont und einem Sonnen-Zenitwinkel von  $96,5^\circ$  ( $6,5^\circ$  unter dem Horizont); in Richtung der Sonne ist der Himmel aufgrund Streuung und Refraktion erhellt und nur die Planeten sowie die hellsten Sterne sind dort zu erkennen. Die »nautische Dämmerung« verläuft dann bis zu einem SZA von  $102^\circ$  ( $12^\circ$  unter dem Horizont); in Richtung Sonne ist der Himmel nur noch schwach erhellt und die meisten Sterne sind zu erkennen. Bis zu einem SZA von  $118^\circ$  ( $18^\circ$  unter dem Horizont) schließlich verläuft die »astronomische Dämmerung« bei der kein Einfluß der Sonne mehr zu erkennen ist. Für weitergehende Informationen sei hier auf Sauermost (1995) verwiesen.

In Tabelle F.1 sind noch einmal alle wichtigen statistischen Datumsangaben für Ny-Ålesund zusammengefaßt.

Tabelle F.1: Die wichtigsten statistischen Datumsangaben zum Standort Ny-Ålesund, berechnet für das Jahr 2001. Aufgrund von Schaltjahren und Datumssprüngen sind diese Angaben für andere Jahre nur auf ein bis zwei Tage genau.

Ereignis	Datum
Ende der Polarnacht (Solfest)	19. Februar
Beginn des Polartages	14. April
Ende des Polartages	24. August
Beginn der Polarnacht (Høstfest)	18. Oktober
Länge des Polartages	132 Tage
Länge der Polarnacht	123 Tage
Übergangstage	110 Tage

## G Abkürzungen

Abkürzung	Bedeutung
AOS	Akusto-Optisches Spektrometer
ARTS	Atmospheric Radiation Transfer System
ASUR	Airborne Submillimeter Radiometer
AVK	Averaging Kernel (Auflösungsfunktionen Matrix)
AWI	Alfred Wegener Institut für Polar und Meeresforschung
BreRAM	Bremen Radiometer for Atmospheric Measurements auch: Bremer Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen
CTM	Chemical Transport Modell
DLR	Deutsches Zentrum für Luft und Raumfahrt
DOAS	Differential Optical Absorption Spectroscopy
DU	Dobson Unit (Maßeinheit für Ozonsäulen)
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
ENVISAT	Environment Satellite
ERS-2	European Remote Sensing Satellite 2
ESA	European Space Agency
FCKW	Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoff
FWHM	Full Width at Half Maximum
FET	Feldeffekt-Transistor (Verstärkertyp)
FTIR	Fourier-Transform Interferometer
FZK	Forschungszentrum Karlsruhe
GOME	Global Ozone Monitoring Experiment
HALOE	Halogen Occultation Experiment
HEMT	High-Electron-Mobility-Transistor (Verstärkertyp)
HF	Hochfrequenz
HFCKW	Hydro-Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoff
HITRAN96	Spektrallinienkatalog Version von 1996
IMK	Institut für Meteorologie und Klimaforschung (FZK)
IUP	Institut für Umweltphysik
LIDAR	Light Detection and Ranging
MARS	Mérida Atmospheric Research Station

Abkürzung	Bedeutung
MIRA-2	Millimeterwellen Radiometer 2
MLS	Microwave Limb Sounder
MPM93	Millimeter Wave Propagation Model Version von 1993
NDSC	Network for the Detection of Stratospheric Change
NAD	Nitric Acid Dihydrat (Salpetersäure-Dihydrat)
NASA	National Aeronautic and Space Administration
NAT	Nitric Acid Trihydrat (Salpetersäure-Trihydrat)
NCEP	National Center for Environmental Prediction
NSF	National Science Foundation
OEM	Optimal Estimation Methode
PLL	Phase-Locked Loop
PSC	Polar Stratospheric Cloud = Polare Stratosphärenwolke
PV	Potential Vorticity = Potentielle Wirbelfeldstärke
PVU	Potential Vorticity Unit (Maßeinheit)
QBO	Quasi-Biennial Oscillation
RAM	Radiometer for Atmospheric Measurements auch: Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen
RAMAS	Radiometer for Atmospheric Measurements at Summit auch: RAM auf Summit
RDF	Reverse Domain Filling
SCIAMACHI	Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography
SAT	Sulphuric Acid Trihydrat (Schwefelsäuretrihydrat)
SIS	Superconductor Insulator Superconductor (Diodentyp)
SNR	Signal to Noise Ratio
SOLVE	SAGE III Ozone Loss and Validation Experiment
SSB	Single Sideband
STS	Supercooled ternary solution = Unterkühlte ternäre Lösung
SZA	Solar-Zenith-Angle (Sonnen Zenitwinkel)
THESEO 2000	Third European Stratospheric Experiment on Ozone (Kampagne des Jahres 2000)
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite
UKMO	United Kingdom Meteorological Office
UTC	Coordinated Universal Time
VMR	Volume Mixing Ratio (Volumen Mischungsverhältnis)
WMO	World Meteorological Organization
ZF	Zwischenfrequenz

## H Glossar

**Absorber:** Dieses spezielle Kohlefasermaterial stellt für eine bestimmte Wellenlänge einen schwarzen Körper dar. Bei Raumtemperatur oder in flüssigen Stickstoff getaucht wird das Absorbermaterial als Kalibrationslast verwendet.

**Airmass Faktoren:** Der Airmass Faktor gibt an, wie viel größer eine Luftschicht für eine schräge Beobachtungsrichtung ist, verglichen mit Zenitrichtung.

**Aktives Chlor:** Es handelt sich um Chlorverbindungen, die im Rahmen der heterogenen Chemie zu einem Abbau von Ozon führen können – primär handelt es sich um Cl, ClO, Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub> und OClO. Aktive Chlorverbindungen können in inaktive Reservoirgase umgewandelt werden.

**Apriori/a priori:** In der Philosophie ein aus Gründen der Vernunft gemachter Ansatz; hier eine Vorgabe durch welche die Information über das untersuchte Problem – hier speziell die Bestimmung eines Spurengasprofils – stabilisiert wird.

**Akustooptisches Spektrometer:** In einem AOS wird ein hochfrequentes Signal mittels eines piezoelektrischen Transducers in Form von Dichteschwankungen auf einen Deflektorkristall geprägt. Ein Laserstrahl wird durch das entstehende Dichtegitter auf ein elektronisch ausgelesenes CCD-Array abgelenkt; der Ablenkwinkel ist proportional der Frequenz, die spektrale Intensität ist proportional der HF Leistung.

**Backend:** Beim RAM ist das Backend der von allen Frontends gemeinsam genutzte Teil des Meßgerätes. Ganz allgemein der Teil eines Radiometers nach dem ersten Verstärker.

**Baseline:** Das Intensitätsspektrum, welches ohne den Einfluß eines atmosphärischen Signales mit dem Radiometer gemessen wird ist die Baseline. Stewellen sind einer der Einflüsse, die sich störend auf die Baseline auswirken können.

- Bias:** Ein konstanter Untergrundbeitrag, der im Retrieval an die Vorwärtsspektren angepaßt wird.
- Cycle/Meßzyklus:** Ein Meßzyklus besteht aus mehreren Phasen die innerhalb eines Frames jeweils aufintegriert werden.
- Denitrifizierung:** Die Partikel von polaren Stratosphärenwolken des Typs II bestehen aus gefrorenem Eis und haben eine Größe von bis zu 10µm. Sie sind mit Salpeter- und Schwefelsäure bedeckt und können bei ausreichender Lebensdauer sedimentieren, was in den entsprechenden Höhenschichten zu einem Verlust von HNO<sub>3</sub> führt.
- Dewar:** Nach Sir James Dewar (Chemiker und Physiker, 1842 bis 1923) benanntes Vakuum-Mantelgefäß zur Aufbewahrung tiefgekühlter Materialien – auch als Thermosflasche bekannt. Umgangssprachlich wird auch das evakuierte Druckgehäuse in dem sich die gekühlten Mikrowellenkomponenten befinden als Dewar bezeichnet.
- Frame/Datensatz:** Das kleinste Datum, das vom Meßprogramm abgespeichert wird. Ein Frame beinhaltet eine Anzahl von Phasen die über mehrere Cycles aufintegriert wurden.
- Frequenzeichung:** Bei der Frequenzeichung findet eine Zuordnung der Kanäle des Spektrometers zu den entsprechenden Frequenzen statt. Eine Frequenzeichung ist notwendig, da die verwendeten akustooptischen Spektrometer einer temperaturabhängigen Frequenzdrift unterworfen sind.
- Frontend:** Beim RAM ist das Frontend der jeweils für eine Spurengaslinie speziell angepaßte Teil des Meßgerätes. Ganz allgemein der Teil des Radiometers bis einschließlich dem ersten Verstärker.
- Gestörte Chemie:** Man spricht von gestörter Chemie, sofern aktives Chlor in Höhenbereichen von etwa 20km vorhanden ist und ein katalytischer Ozonabbau stattfinden kann.
- Heterodyn Verfahren:** Bei diesem Verfahren wird die nichtlineare Strom-Spannungs Charakteristik einer Diode verwendet um ein hochfrequentes Signal mit Hilfe eines Lokaloszillators auf ein niederfrequenteres Signal herunterzumischen. Dabei bleiben alle spektralen Informationen erhalten.
- Heterogene Chemie:** Bei der heterogenen Chemie sind Stoffe die sich in unterschiedlichen Aggregatzuständen befinden beteiligt. Insbesondere sind hier die Reaktionen auf den Partikel polarer Stratosphärenwolken gemeint.
- Housekeeping Daten:** Darunter fallen alle Informationen, die neben den ei-

gentlichen Signalspektren vom Radiometer gemessen und mit abgespeichert werden.

**In-situ Messung:** Im Gegensatz zu einer fernerkundlichen Messung findet eine in-situ Messung am Ort des Meßgerätes statt. Abhängig von der Dauer der Messung, beziehungsweise der Rate der Datenaufnahme besitzen in-situ Messungen eine sehr hohe räumliche Auflösung.

**Kreuzpolarisation:** Man spricht von Kreuzpolarisation, wenn ein Bauteil welches in nur einer Polarisationsrichtung eine Empfindlichkeit besitzen sollte auch in der  $90^\circ$  dazu verkippten Kreuzrichtung sensitiv ist.

**Mérida:** Der Ort Mérida befindet sich in Venezuela bei  $8^\circ 36'$  Nord und  $71^\circ 8'$  West auf 1.600 Metern über Meereshöhe in den »Cordillera de Mérida«, die die nördlichen Ausläufer der Anden bilden. Als Hauptstadt des gleichnamigen Verwaltungsbezirks besitzt die Stadt etwa 150.000 Einwohner.

**Mischer:** Das HF-Bauelement in dem durch heterodyne Überlagerung mit einem Lokaloszillator ein Signal auf eine niedrigere Frequenz umgesetzt wird.

**Ny-Ålesund:** Das nördlichste Dorf der Welt bei  $78^\circ 55'$  Nord und  $11^\circ 55'$  Ost am Kongsfjord auf dem Spitzbergen Archipel. Das Dorf befindet sich im Besitz der »Kingsbay Kull Kompanie AS«, die Wissenschaftlern aus der ganzen Welt eine Infrastruktur zum Forschen bereitstellt. Im NDSC Observatorium befindet sich das für diese Arbeit verwendete Radiometer für atmosphärenphysikalische Messungen (RAM).

**Optimal Estimation Methode:** Abgekürzt OEM. Ein iteratives mathematisches Verfahren nach Clive Rodgers. Unter Verwendung von a priori Informationen wird ein optimales Spurengasprofil (der sogenannte »Beste Schätzer«) zum Spektrum einer Spurengaslinie bestimmt. Voraussetzungen sind ein Vorwärtsmodell mit dem der Meßvorgang beschrieben wird, sowie ein Vorwärtsprogramm zur Bestimmung eines Spurengasspektrums aus einem vorgegebenen Profil.

**Phase/Meßphase:** Jeder Cycle besteht aus mehreren Meßphasen die jeweils mit der Auslesung des Spektrometers und gegebenenfalls einer bestimmten Spiegelposition verknüpft sind.

**Polare Stratosphärenwolken:** Eis und Aerosolwolken die sich unterhalb bestimmter Grenztemperaturen in der Stratosphäre ausbilden können. An den Oberflächen der Wolkenpartikel können die heterogenen chemischen Reaktionen stattfinden.

**Polarwirbel:** Ein stabiles Tiefdruckgebiet, das sich im Winter in der arktischen

Stratosphäre ausbildet und die eingeschlossenen Luftmassen nach außen abschließt. Die niedrigen Temperaturen begünstigen die Ausbildung von Polaren Stratosphärenwolken.

**Quasioptik:** Üblicherweise der Eingangsbereich des Radiometers in dem die Strahlführung mittels Spiegeln und Gittern geschieht. Sofern der Strahldurchmesser kleiner wird als etwa das hundertfache der Wellenlänge ist die geometrische Optik nicht mehr anwendbar; stattdessen wird die Gauß-Näherung wie bei Goldsmith (1997) ausführlich beschrieben, verwendet.

**Reservoirgase:** Chemische Verbindungen wie HCl oder ClONO<sub>2</sub> in denen aktive Chlor Radikale eingebunden werden können und so keinen Ozonabbau mehr verursachen können. Durch Photodissoziation kann Chlor aus den Reservoirgasen wieder freigesetzt werden.

**Retrieval/Inversion:** Der Teil der Auswertung in welchem aus Frequenz- und Leistungskalibrierten Spektren die Spurengasprofile erzeugt werden. Umgangssprachlich versteht man unter dem »invertieren« eines Spektrums die Bestimmung des Spurengasprofiles aus den Meßdaten.

**Sky-Dip:** Eine Folge von Atmosphärenmessungen unter äquidistanten Winkeln. Aus dem Sky-Dip werden bei der Referenzstrahlmethode die optimalen Signalwinkel bestimmt.

**Slope:** Ein Untergrund in Form einer linearen Rampe, die im Retrieval an die Vorwärtsspektren angepaßt.

**Sonnen-Zenitwinkel:** Der Winkel unter dem die Sonne zum Zenit steht. Bei einem Sonnen-Zenitwinkel von 90° steht die Sonne am Horizont, bei etwa 95° beginnt die Dämmerung. Siehe dazu auch ausführlicher den Anhang F.

**Summit:** Die Forschungsstation Summit befindet sich bei 72°34' Nord und 38°29' West auf 3.200 Metern über Meereshöhe im Zentrum von Grönland. Unterhalten wird sie von der US Amerikanischen NSF (Abkürzung für »National Science Foundation«), wobei das lokale Management und die Logistik in der Hand der Firma »VECO Polar Resources« liegen.

**Stehwelle:** Es handelt sich hierbei um Mehrfachreflexionen innerhalb des Radiometersystems. Je nach Wellenlänge interferieren die Teilstrahlen konstruktiv oder destruktiv, so daß sich eine Stehwelle als sinusförmige Störung im Intensitätsspektrum ausbildet.

**Tracer:** Spurengase mit langer Lebensdauer wie zum Beispiel Wasserdampf können als Tracer verwendet werden. Die Korrelation von Tracern mit an-

deren Tracern oder Spurengasen geben Information über das dynamische Verhalten von Luftmassen.

**UTC:** die »Coordinated Universal Time« wurde im Jahre 1964 als Nachfolger der bis dahin gültigen »Greenwich Mean Time« eingeführt. Durch Einfügung von Schaltsekunden wird die UTC innerhalb eines Fehlers von 0,9 Sekunden an die Rotation der Erde angepaßt; Schaltsekunden finden bei Bedarf immer in der letzten Minute eines Juni- oder Dezembermonats statt. Alle RAM Uhrzeiten sind UTC Zeiten.

**Vorwärtsprogramm/Vorwärtsmodell:** Zwei Begriffe, die leicht miteinander verwechselt werden können. Mit dem Vorwärtsprogramm wird aus einem gegebenen Spurengasprofil das am Boden meßbare Spektrum bestimmt. Dabei werden die Absorptionskoeffizienten der verschiedenen Höhenschichten bestimmt und eine Strahlungstransferrechnung durchgeführt. Wichtig sind hierfür die genaue Kenntnis über die Parameter der Spurengaslinie. Das Vorwärtsmodell (auch »Vorwärtsproblem«) ist eine Beschreibung des Strahlungstransportes in Matrix-Schreibweise und wird für die Inversion gemäß Optimal Estimation Methode benötigt. In das Modell fließen Informationen über die verwendete Meßmethodik (Referenzstrahl, Totalpower, et cetera) und Eigenschaften des Meßgerätes (Fenstertransmissionen, et cetera) ein.

**Whisker:** Der Antennendraht mit dem das Hochfrequenz Signal innerhalb des Mischers in die Mischerdiode eingekoppelt wird.



# I Danksagungen

Meiner Familie für ihre uneingeschränkte Unterstützung, den mir gegebenen Halt und die dauerhafte Inspiration.

Professor Doktor Klaus F. Künzi für die Möglichkeit diese Arbeit durchzuführen und das in mich gesetzte Vertrauen.

Professor Doktor Jörn Bleck-Neuhaus für das von ihm übernommene Koreferat meiner Arbeit.

Doktor Ulf Klein, meinem wissenschaftlichen Betreuer und Freund für seine Hilfen und Ermahnungen sowie natürlich die unzähligen Stunden an Spaß die wir in durcharbeiteten Nächten in Ny-Ålesund hatten.

Meinen lieben Kollegen und Freunden aus der RAM Gruppe (den sogenannten RAMlern) wie Stefan Bagdohn, Bernd Barry, Nicole Buschmann, Annika Jahnke, Michael Hoock, Jens Langer, Björn-Martin Sinnhuber sowie insbesondere Ingo Wohltmann für seine Hilfe beim Wasserdampf Retrieval.

Meinen lieben Kollegen und Freunden aus der ASUR Gruppe wie Holger Bremer, Armin Kleinböhl, Miriam von König und Harry Küllmann für ihre Unterstützung und die Bereitstellung von Meßdaten – und nicht zu vergessen die zahlreichen mittäglichen Diskussionen.

Stefan Bühler und seiner Arbeitsgruppe für die Unterstützung beim Wasserdampf Retrieval.

Unserem technischen Mitarbeiter Gunter Näveke für seinen umfassenden Rat in allen Belangen der Mikrowellenradiometrie.

Dem Alfred-Wegener-Institut für Polar und Meeresforschung, namentlich Professor Otto Schrems sowie Doktor Roland Neuber für die Bereitstellung der AWI Ressourcen.

Den Stationsingenieuren der Koldewey Station wie Nicole Spelten, Christian Wille, Kay Krüger und Holger Pötschick für die Betreuung des RAM und die vielen vergnüglichen Stunden die wir in kalten Polarnächten im NDSC Observatorium hatten.

Den Stationsleitern der Koldewey Station wie Dirk Römermann, Thomas Schmidt, Andrew Klaas und Mareile Wolff für ihre logistische Unterstützung und die persönliche Betreuung vor Ort, die manchmal auch über das zu Erwartende hinaus ging.

Ingo Beninga und Wilfried Ruhe von der Impres GmbH, die uns in Ny-Ålesund oftmals hilfreich mit Rat und Tat zur Seite standen.

Allen Wissenschaftlern und Arbeitsgruppen, deren Daten in der einen oder anderen Form in meine Doktorarbeit eingegangen sind, dabei im Besonderen Martyn Chipperfield und seinen Mitarbeitern für die Bereitstellung der SLIMCAT Daten.

Den vielen Mitarbeitern des IUP die mir in der einen oder anderen Weise bei der Fertigstellung meiner Arbeit geholfen haben.

Den Mitarbeitern der Kingsbay Kull Kompanie AS, insbesondere Thorsten Ronge sowie Nina und Even Moldstad aber auch allen anderen Wissenschaftlern und Freunden in Ny-Ålesund.

Abschließend meinen zahlreichen Kollegen aus den verschiedensten Ländern der Erde, die ich auf Tagungen treffen konnte und mit denen ich in vielen Projekten zusammenarbeiten durfte. Sie haben mir gezeigt, daß es in der Welt eine Gemeinschaft gibt, die weit über Ländergrenzen und nationale Eitelkeiten hinausgeht.

## J Veröffentlichungen

**Microwave Measurements of Arctic Chlorine Monoxide and Computed Chemical Ozone Loss in Spring 2000;** 2001; K. Lindner, S. Bagdohn, U. Klein, I. Wohltmann, K. F. Künzi; Im Druck bei Advances in Space Research

**Ozone depletion and chlorine activation in the Arctic winter 1999/2000 observed in Ny-Ålesund;** 2001; U. Klein, I. Wohltmann, K. Lindner, K. F. Künzi; Im Druck bei Journal of Geophysical Research.

**Winter and Spring Observations of Stratospheric Chlorine Monoxide from Ny-Ålesund, Spitsbergen, in 1997/98 and 1998/99;** 2000; U. Klein, B. Barry, K. Lindner, I. Wohltmann, K. F. Künzi; Geophysical Research Letters, Vol. 27, No. 24 ; Seiten 4.093–4.097.

**Ground-Based Water Vapour Microwave Radiometry in the THESEO/WAVE Project;** 2000; K. Lindner, B. Barry, U. Klein, K.F. Künzi, I. Wohltmann, P. Forkman, G. Elgered, P. Eriksson, C. Jimenez, J. Sharokhi, A. Winnberg; European Commission, Air pollution report 73, Stratospheric ozone 1999, Proc. of the fifth European symposium, 27 September to 1 October 1999, Saint Jean de Luz, France, EUR 19340, Seiten 530–533.

**Water vapour distribution inside and outside the polar vortex during THESEO 1999;** 2000; J. de La Noë, J. Ovarlez, H. Ovarlez, C. Schiller, N. Lautié, P. Ricaud, J. Urban, D. G. Feist, L. Zalesak, N. Kämpfer, M. Ridal, D. Murtagh, K. Lindner, U. Klein, K. Künzi, P. Forkman, A. Winnberg, P. Hartogh, and A. Engel.; European Commission, Air pollution report 73, Stratospheric ozone 1999, Proc. of the fifth European symposium, 27 September to 1 October 1999, Saint Jean de Luz, France, EUR 19340; Seiten 558–561.

**Observations of Polar Stratospheric Chlorine Monoxide in Ny-Ålesund, 1998 and 1999;** 2000; U. Klein, B. Barry, K. Lindner, I. Wohltmann, K. F. Künzi; European Commission, Air pollution report 73, Stratospheric ozone

1999, Proc. of the fifth European symposium, 27 September to 1 October 1999, Saint Jean de Luz, France, EUR 19340; Seiten 272–275.

**Comparison of Ozone Measuring Instruments in Ny-Ålesund, Spitsbergen;** 2000; I. Wohltmann, B. Barry, U. Klein, J. Langer, K. Lindner, K.F. Künzi, P. von der Gathen; European Commission, Air pollution report 73, Stratospheric ozone 1999, Proc. of the fifth European symposium, 27 September to 1 October 1999, Saint Jean de Luz, France, EUR 19340; Seiten 750–753.

**The Radiometer for Atmospheric Measurements;** 1999; K. Lindner, B. Barry, U. Klein, J. Langer, B.-M. Sinnhuber, I. Wohltmann, K. F. Künzi; Microwave Radiometry and Remote Sensing of the Earth's Surface and Atmosphere by P. Pampaloni and S. Paloscia, VSP Publishing; Seiten 427–432.

## Literaturverzeichnis

- Albritton, D. L. und Kuijpers, L. (Hrsg.), 1999: *A Decade of Assessments for Decision Makers Regarding the Protection of the Ozone Layer: 1988 – 1999*. Synthesis of the Reports of the Scientific, Environmental Effects, and Technology and Economic Assessment Panels of the Montreal Protocol, United Nations Environment Programme (UNEP), Nairobi, Kenya.
- Anderson, J., Russel, J. M. I., Solomon, S. und Deaver, L. E., 2000: Halogen Occultation Experiment confirmation of stratospheric chlorine decreases in accordance with the Montreal Protocol. *J. Geophys. Res.*, **105**, 4.483–4.490.
- Baldwin, M. P., Gray, L. J., Dunkerton, T. J., Hamilton, K., Haynes, P. H., J., R. W., Holton, J. R., Alexander, M. J., Hirota, I., Horinouchi, T., Jones, D. B. A., Kinnerlsey, J. S., Marquardt, C. und Takahashi, M., 2001: The Quasi-Biennial Oscillation. *Rev. Geophys.*, **39**, 2, 179–229.
- Barnes, J. A. und Allan, D. W., 1964: Effects of Long-Term Stability on the Definition and Measurement of Short-Term Stability. In *Proceedings of the IEEE-NASA Symposium on the Definition and Measurement of Short-Term Frequency Stability*.
- Barry, B., 2000: *ClO-Messungen und Interpretation mit einem bodengebundenen Mikrowellen-Radiometer*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Bates, D. R. und Nicolet, M., 1950: The photochemistry of atmospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, **55**, 301.
- Berg, H., 2000: *Weiterentwicklung der Millimeterwellenradiometrie stratosphärischer Spurengase in Emission und Absorption*. Doktorarbeit, Universität Karlsruhe.
- Bühler, S., 1999: *Microwave Limb Sounding of the Stratosphere and Upper Troposphere*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Bremer, H., König, v., M., Kleinböhl, A., Küllmann, H., Künzi, K., Bramstedt, K., Burrows, J. P., Eichmann, K.-U., Weber, M. und Goede, A. P. H., 2001: Ozone depletion observed by ASUR during the Arctic Winter 1999/2000. *J. Geophys. Res.* In Druck.

- Carslaw, K. S., Peter, T. und Clegg, S. L., 1997: Modeling the composition of liquid stratospheric aerosols. *Rev. Geophys.*, **35**, 125–154.
- Chapman, S., 1930: On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere. *Philos. Mag.*, **10**, 369.
- Chipperfield, M., 1996: *The SLIMCAT Offline Transport Model*. Tech. Rep., Centre for Atmospheric Science, University of Cambridge.
- Crutzen, P. J. und Arnold, F., 1986: Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: A major cause for the springtime ozone hole. *Nature*, **324**, 651–655.
- Elachi, C., 1987: *Introduction to the Physics and Techniques of Remote Sensing*. John Wiley & Sony, New York.
- Encarta Weltatlas, 1999: CD-ROM Ausgabe. Microsoft Corporation, Seattle.
- Farman, J. C., Gardiner, B. G. und Shanklin, J. D., 1985: Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO<sub>x</sub>/NO<sub>x</sub> interaction. *Nature*, **315**, 207–210.
- Foster, P. M. d., F. und Shine, K. P., 1999: Stratospheric water vapour changes as a possible contributor to observed stratospheric cooling. *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 21, 3.309–3.312.
- Goldsmith, P. F., 1997: *Quasioptical Systems: Gaussian Beam, Quasioptical Propagation and Applications*. IEEE Microwave Theory and Techniques Society, New York.
- Graedel, T. E. und Crutzen, P. J., 1994: *Chemie der Atmosphäre*. Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg.
- Holleman, A. F., Wiberg, E. und Wiberg, N., 1995: *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*. 101 Aufl., de Gruyter, Berlin.
- Holton, J. R. und Gettelman, A., 2001: Horizontal transport and the dehydration of the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* Submitted.
- Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglas, A. R., Rood, R. B. und Pfister, L., 1995: Stratosphere-troposphere exchange. *Rev. Geophys.*, **33**, 403–439.
- Janssen, M. A., 1993: *Atmospheric Remote Sensing by Microwave Radiometry*. John Wiley & Sony, New York.
- Jarchow, C., 1998: *Bestimmung atmosphärischer Wasserdampf- und Ozonprofile mittels bodengebundener Millimeterwellen-Fernerkundung*. Doktorarbeit, Max Planck Institut für Aeronomie. MPAAE-W-016-99-06.
- Klein, U., 1993: *Aufbau und Betrieb eines breitbandigen, bodengestützten*

- Millimeterwellen-Radiometers zur Messung atmosphärischer Spurenstoffe.* Verlag Dr. Chaled Shaker, Aachen.
- Klein, U., Wohltmann, I., Lindner, K. und Künzi, K. F., 2001: Ozone depletion and chlorine activation in the Arctic winter 1999/2000 observed in Ny-Ålesund. *J. Geophys. Res.* In Druck.
- Kleinböhl, A., Bremer, H., König, M. v., Küllmann, H., Künzi, F. F., Goede, A. P. H., Browell, E. V., Grant, W. B., Toon, G. C., Blumenstock, T., Galle, B., Sinnhuber, B. M. und Davies, S., 2001: Vortexwide Denitrification of the Arctic Polar Stratosphere in Winter 1999/2000 determined by Remote Observations. *J. Geophys. Res.* Eingereicht zur Veröffentlichung.
- König, M. v., 2000: *Chloraktivierung und PSC-Bildung in der arktischen Stratosphäre: Analyse und Interpretation flugzeuggetragener Submillimeterwellenmessungen.* Doktorarbeit, Universität Bremen.
- König, M. v., Bremer, H., Eyring, V., Goede, A., Hetzheim, H., Kleipool, Q., Küllmann, H. und Künzi, K., 2000: An airborne submm radiometer for the observation of stratospheric trace gases. In *Microwave Radiometry and Remote Sensing of the Earth's Surface and Atmosphere*, Pampaloni, P. und Paloscia, S., Hrsg., VSP Utrecht.
- Kopp, G., 2000: *Inversion arktischer stratosphärischer Spurengasprofile für die Ozonforschung aus Messungen eines bodengebundenen Millimeterwellenradiometers.* Doktorarbeit, Universität Karlsruhe.
- Kraus, H., 2000: *Die Atmosphäre der Erde.* Friedrich Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft mbH, Braunschweig.
- Krupa, R., 1997: *Millimeterwellen-Radiometrie stratosphärischer Spurengase unter Anwendung balancierter Kalibrierung.* Doktorarbeit, Universität Karlsruhe.
- Langer, J., 1999: *Messung des arktischen stratosphärischen Ozons: Vergleich der Ozonmessungen in Ny-Ålesund, Spitzbergen, 1997 und 1998.* Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Liebe, H. J., 1989: Accurate Foreign-Gas-Broadening Parameters of the 22-GHz H<sub>2</sub>O Line from Refraction Spectroscopy. *Int. J. Infrared and Millimeter Waves*, **10**, 6, 631–650.
- Liebe, H. J. und Dillon, T. A., 1968: Accurate Foreign-Gas-Broadening Parameters of the 22-GHz H<sub>2</sub>O Line from Refraction Spectroscopy. *J. Chem. Phys.*, **50**, 2, 727–732.
- Liebe, H. J., Hufford, G. A. und Cotton, M. G., 1993: Propagation modeling of

- moist air and suspended water/ice particles at frequencies below 1000 GHz. In *52nd Specialists' Meeting for the Electromagnetic Wave Propagation Panel, Palma De Mallorca, Spain, 1993*, AGARD.
- Liewn, L. P., Hints, E. J., Stone, E. M., Weinstock, E. M. und Randel, W. J., 2000: The seasonal cycle of water vapor and saturation mixing ratio in the extratropical lowermost stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **105**, 26.519–26.530.
- Lindner, K., Bagdohn, S., Klein, U., Wohltmann, I. und F., K. K., 2001: Microwave Measurements of Arctic Chlorine Monoxide and Computed Chemical Ozone Loss in Spring 2000. *Advances in Space Research*. In Druck.
- Lindner, K., Barry, B., Klein, U., Wohltmann, I., Künzi, K. F., Forkman, P., Elgered, G., Eriksson, P., Jiménez, C., Shahrokhi, J. und Winnberg, A., 1999: Ground-Based Water Vapour Microwave Radiometry in the THESEO/WAVE Project. In *Stratospheric Ozone 1999; Proceedings of the fifth European symposium*, NDSC.
- Manney, G. L. und Sabutis, J. L., 2000: Development of the polar vortex in the 1999-2000 Arctic winter stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 2.589–2.592.
- Molina, J. M. und Rowland, F. S., 1974: Stratospheric sink for chlorofluoromethans: Chlorine catalyzed destruction of ozone. *Nature*, **249**, 810–812.
- Molina, L. T. und Molina, J. M., 1987: Production of Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub> from the self-reaction of the ClO radical. *J. Phys. Chem.*, **91**, 433–436.
- Mote, P. W., Rosenlof, K. H., McIntyre, E. S., M. E. and Carr, Gille, J. C., Holton, J. R., Kinnerson, J. S., Pumphrey, H. C., Russel III, J. M. und Waters, J. W., 1996: An atmospheric tape recorder: The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, **101**, 3.989–4.006.
- Mrowinski, D., 1970: Refraktion und Absorption in atmosphärischen Gasen in der Umgebung der 22 GHz-Wasserdampf-Rotationslinie. *Z. angew. Phys.*, **29**, 5, 323–330.
- Nash, E. R., Newman, P. A., Rosenfield, J. E. und Schoeberl, M. R., 1996: An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity. *J. Geophys. Res.*, **101**, 9471–9478.
- Nedoluha, G. E., Bevilacqua, R. M., Gomez, R. M., Thacker, D. L., Waltman, W. B. und Pauls, T. A., 1995: Ground-based measurements of water vapor in the middle atmosphere. *J. Geophys. Res.*, **100**, 2.927–2.939.
- Newman, P. A., Harris, N. R. P., Adriani, A., Amanatidis, G. T., Anderson, J. G., Braathen, G. O., Brune, W. H., Carslaw, K. S., Craig, M. T., DeCola,

- P. E., Guirlet, M., Hipskind, S. R., Kurylo, M. J., Küllmann, H., Larsen, N., Mégie, G. J., Pommereau, J. P., Poole, L. R., Schoeberl, M. R., Strohm, F., Toon, O. B., Trepte, C. R. und Roozendael, M. v., 2001: An overview of the SOLVE-THESEO 2000 campaign. *J. Geophys. Res.* Eingereicht zur Veröffentlichung.
- Parrish, A., Zafra, R. L. d., Solomon, P. M. und Barrett, J. W., 1988: A ground-based technique for millimeter wave spectroscopic observations of stratospheric trace constituents. *Radio Science*, **23**, 2, 106–118.
- Peter, T., 1997: Microphysics and heterogeneous chemistry of polar stratospheric clouds. *Ann. Rev. Phys. Chem.*, **48**, 785–822.
- Pickett, H. M., 1980: Effects of velocity averaging on the shapes of absorption lines. *J. Chem. Phys.*, **73**.
- Press, W. H., Flannery, B. P., Teukolsky, S. A. und Vetterling, W. T., 1990: *Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, Cambridge.
- Raffalski, U., 1993: *Mikrowellen-Radiometrie in der Atmosphärenforschung unter Verwendung der Referenzstrahl-Methode*. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- Raffalski, U., 1997: *Messung stratosphärischer Spurengase über Ny-Ålesund, Spitzbergen, mit Hilfe eines bodengebundenen Mikrowellen-Radiometers*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Rex, M., Salawitch, R. J., Harris, N. R. P., von der Gathen, P., Braathen, G. O., Schulz, A., Deckelman, H., Chipperfield, M., Sinnhuber, B.-M., Reimer, E., Alfier, R., Bevilacqua, R., Hopple, K., Fromm, J., M. Lumpe, Küllmann, H., Kleinböhl, A., Bremer, H., König, v., M., Künzi, K., Toohey, D., Vömel, H., Richard, E., Aikin, K., Jost, H., Greenblatt, J. B., Loewenstein, M., Podolske, J. R., Webster, C. R., Flesch, G. J., Scott, D. C., Herman, R. L., Elkins, J. W., Ray, E. A., Moore, F. L., Hurst, D. F., Romashkin, P., Toon, G. C., Sen, B., Margitan, J. J., Wennberg, P., Neuber, R., Allart, M., Bojkov, B. R., Claude, H., Davies, J., Davies, W., De Backer, H., Dier, H., Dorokhov, V., Fast, H., Kondo, Y., Kyrö, E., Litynska, Z., Mikkelsen, I. S., Molyneux, M. J., Moran, E., Nagai, T., Nakane, H., Parrondo, C., Ravagnani, F., Skrivankova, P., Viatte, P. und Yushkov, V., 2001: Chemical depletion of Arctic ozone in winter 1999/2000. *J. Geophys. Res.* In Druck.
- Ricaud, P., Chipperfield, M. P., Waters, J. W., Russel, J. M. I. und Roche, A. E., 2000: Temporal evolution of chlorine monoxide in the middle stratosphere.

- J. Geophys. Res.*, **105**, 4.459–4.469.
- Rodgers, C. D., 1976: Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation. *Rev. Geophys. Space Phys.*, **14**, 609–624.
- Rodgers, C. D., 1990: Characterization and error analysis of profile retrieval from remote sounding measurements. *J. Geophys. Res.*, **95**, 5.587–5.595.
- Rodgers, C. D., 2000: *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*. World Scientific Publishing Co. Ltd., Singapore.
- Roedel, W., 1994: *Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre*. Springer-Verlag, Berlin.
- Rosenkranz, P. W., 1993: Absorption of microwaves by atmospheric gases. In *Atmospheric Remote Sensing by Microwave Radiometry*, Jansen, M. E., Hrsg., John Wiley & Sony, New York.
- Rosenlof, K. H., Oltmans, S. J., Kley, D., Russell III, J. M., Chiou, E. W., Chu, W. P., Johnson, D. G., Kelly, K. K., Michelsen, H. A., Nedoluha, G. E., Remsberg, E. E., Toon, G. C. und McCormick, M. P., 2001: Stratospheric water vapor increases over the past half-century. *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 7, 1.195–1.198.
- Salby, M. L., 1996: *Fundamentals of Atmospheric Physics*. Academic Press Inc, Sand Diego, CA.
- Santee, M. L., Manney, G. L., Livesey, N. J. und Waters, J. W., 2000: UARS Microwave Limb Sounder Observations of Denitrification and Ozone Loss in the 2000 Arctic Late Winter. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 3.213–3.216.
- Sauermost, R. (Hrsg.), 1995: *Lexikon der Astronomie: Die große Enzyklopädie der Weltraumforschung in zwei Bänden*. Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg.
- Schieder, R., Rau, G. und B., V., 1984: Characterization and Measurement of Radiometer Stability. In *Proceedings of the 14th European Microwave Conference*.
- Schieder, R., Rau, G. und B., V., 1986: Characterization of Measurement Stability. In *Instrumentation for Submillimeter Spectroscopy*.
- Seele, C. und Hartogh, P., 1999: Water vapor of the polar middle atmosphere: Annual variation and summer mesosphere conditions as observed by ground-based microwave spectroscopy. *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 1.517–1.520.
- Shindell, D. T., 2001: Climate and ozone response to increased stratospheric

- water vapor. *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 8, 1.551–1.154.
- Shindell, D. T. und Zafra, R. L. d., 1996: Chlorine monoxide in the Antarctic spring vortex: A comparison of measured and modeled diurnal cycling over McMurdo Station in 1993. *J. Geophys. Res.*, **101**, 1.475–1.487.
- Sinnhuber, B.-M., 1998: *Variabilität der arktischen Ozonschicht: Analyse und Interpretation bodengebundener Millimeterwellenmessungen*. Doktorarbeit, Universität Bremen.
- Sinnhuber, B. M., Chipperfield, M. P., Davies, S., Burrows, J. P., Eichmann, K. U., M., W., Gathen, P. v., Guirlet, M., Cahill, G. A., Lee und Pyle, J. A., 2000: Large Loss of total ozone during the Arctic winter 1999/2000. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 3.473–3.476.
- Smith, C. A., Haigh, J. D. und Toumi, R., 2001: Radiative Forcing due to Trends in Stratospheric Water Vapour. *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 1, 179–182.
- Smith, C. A., Toumi, R. und Haigh, J. D., 1999: Seasonal trends in stratospheric water vapor. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 12, 1.687–1.690.
- Solomon, P., Barrett, J., Connor, B., Zoonematkermani, S., Parrish, A., Lee, A., Pyle, J. und Chipperfield, M., 2000: Seasonal observations of chlorine monoxide in the stratosphere over Antarctica during the 1996–1998 ozone holes and comparison with the SLIMCAT three-dimensional model. *J. Geophys. Res.*, **105**, 28.979–29.001.
- Solomon, S., 1999: Stratospheric Ozone Depletion: A Review of Concepts and History. *Rev. Geophys.*, **37**, 3, 275–316.
- Solomon, S., Garcia, R. R., Rowland, F. S. und Wuebbels, D. J., 1986: On the depletion of Antarctic ozone. *Nature*, **321**, 755–758.
- Stimpfle, R. M., Wilmouth, D. M., Salawitch, R. J., Anderson, J. G. und Bui, T. P., 2001: First measurements of ClOOCl in the stratosphere; the coupling of ClOOCl and ClO in the Arctic polar vortex. *J. Geophys. Res.* Eingereicht zur Veröffentlichung.
- Stolarski, R. S. und Cicerone, R. J., 1974: Stratospheric chlorine: A possible sink for ozone. *Can. J. Chem.*, **52**, 1.610–1.615.
- Sutton, R. T., Mclean, H., Swinbank, R., O'Neill, A. und Taylor, F. W., 1994: High-resolution stratospheric tracer fields estimated from satellite observations using Lagrangian trajectory calculations. *J. Atmos. Science*, **51**, 2.995–3.005.
- Toon, O. B., Hamill, P., Turco, R. P. und Pinto, J., 1986: Condensation of HNO<sub>3</sub> and HCl in the winter polar stratospheres. *Geophys. Res. Lett.*, **13**, 1.284–

- 1.287.
- Ulaby, T. U., Moore, R. K. und K., F. A., 1981: *Microwave Remote Sensing: Active and Passive; Three Volumes*. Artech House Inc, Norwood, MA.
- Urban, J., de La Noe, J., Raffalski, U., Ricaud, P. und Schneider, N., 2001: Retrieval of stratospheric water vapour profiles from ground-based observations of the 22.235 GHz line during SOLVE/THESEO-2000 at Kiruna (Sweden). In *Proceedings EGS 2001, Nice, France*, EGS.
- Vowinkel, B., 1988: *Passive Mikrowellenradiometrie*. Friedrich Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft mbH, Braunschweig.
- Wagner, T. F., Wittrock, F., Richter, A., Wenig, M., Burrows, J. P. und Platt, U., 2001: Continuous monitoring of the high and persist chlorine activation during the Arctic Winter 1999/2000 by the GOME instrument on ERS-2. *J. Geophys. Res.* Eingereicht zur Veröffentlichung.
- Waugh, D. W., Considine, D. B. und Fleming, E. L., 2001: Is upper stratospheric chlorine decreasing as expected? *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 1.187–1.190.
- Wayne, R. P., 2000: *Chemistry of Atmospheres*. Oxford University Press, Oxford.
- Webster, C. R., May, R. D., Toohey, D. W., Avallone, L. M., Anderson, J. G., Newman, P., Lait, L., Schoeberl, M. R., Elkins, J. W. und Chan, K. R., 1993: Chlorine chemistry on polar stratospheric cloud particles in the Arctic winter. *Science*, **261**, 1.130–1.133.
- WMO, 1999: *Scientific assessment of ozone depletion: 1998; Global Ozone Res. and Monit. Proj.* Tech. Rep. 44, World Meteorological Organization, Geneva.
- Wohltmann, I., 1999: *Auswertung von Spektren des RAM: Homogenisierung eines mehrjährigen Datensatzes und Erstellung von Ozonprofilen*. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- Wohltmann, I., 2002: *Dissertation*. Doktorarbeit, Universität Bremen. In Vorbereitung.
- Zafra, R. L. d., Jaramillo, M., Barrett, J., Emmons, L. K., Solomon, P. M. und Parrish, A., 1989: New observations of large concentrations of ClO in the springtime lower stratosphere over Antarctica and its implications for ozone-depleting chemistry. *J. Geophys. Res.*, **94**, 11.423–11.428.
- Zellner, R., 2000: *Global aspects of atmospheric chemistry*. Topics in physical chemistry; Volume 6, Springer-Verlag, Darmstadt.



