

**Messungen der stratosphärischen Spurengase
ClO, HCl, O₃, N₂O, H₂O und OH
mittels flugzeuggetragener
Submillimeterwellen-Radiometrie
bei 650 und 2500 GHz**

**Measurements of the stratospheric trace gases
ClO, HCl, O₃, N₂O, H₂O, and OH
using airborne submm-wave radiometry
at 650 and 2500 GHz**

Joachim Urban

**Ber. Polarforsch. 264 (1998)
ISSN 0176 - 5027**

Joachim Urban
Institut für Umweltphysik
Universität Bremen, FB 1
Kufsteiner Straße
D-28359 Bremen
email: jo@atm.physik.uni-bremen.de

Die vorliegende Arbeit ist die inhaltlich unveränderte Fassung einer Dissertation, die am 30. September 1997 am Fachbereich 1 der Universität Bremen zur Erlangung eines Grades Doktor der Naturwissenschaften eingereicht wurde.

Überblick

Der Eintrag von Chlor- und Bromverbindungen anthropogenen Ursprungs in die Atmosphäre hat zu einer Schädigung der das Leben auf der Erde vor der ultravioletten Sonnenstrahlung schützenden stratosphärischen Ozonschicht geführt. Der Untersuchung der Mechanismen des Ozonabbaus in der Stratosphäre und der Überwachung der Konzentrationen der involvierten Spurengase kommt somit eine besondere Bedeutung zu. Zahlreiche für die Ozonchemie in der Stratosphäre relevante Spurengase besitzen gerade bei Submillimeterwellenlängen ausgeprägte spektrale Signaturen und lassen sich dort mit Fernerkundungsmethoden gut messen. Aufgrund der in diesem Spektralbereich hohen Wasserdampfabsorption müssen Messungen von einem oberhalb der Troposphäre fliegenden Träger aus durchgeführt werden.

Der flugzeuggetragene SUMAS/ASUR¹-Heterodynempfänger – eine gemeinsame Entwicklung des *Instituts für Umweltphysik der Universität Bremen* und der *Space Research Organization of the Netherlands (Groningen/Utrecht)* – gestattet Messungen des für den Ozonabbau in der unteren Stratosphäre der winterlichen Polarwirbel hauptverantwortlichen Chlorradikals ClO, des Chlorreservoirgases HCl, des durch chemische Prozesse unbeeinflussten und somit zur Identifikation von Transportprozessen geeigneten Spurengases N₂O sowie von Ozon. Die Verwendung nicht-linearer Inversionstechniken erlaubt die Bestimmung von Höhenprofilen aus den vom SUMAS/ASUR-Empfänger im Bereich 624-654 GHz spektral aufgelöst gemessenen druckverbreiterten thermischen Emissionslinien der Spurengase. Mit dem Instrument wurden im Zeitraum 1994-1997 jährlich Meßkampagnen zur Erkundung des Zustands der winterlichen arktischen Stratosphäre sowie der Stratosphäre mittlerer Breiten durchgeführt. Neben dem Einsatz, der Optimierung und der Charakterisierung sowohl des Meßsystems als auch des Inversionsverfahrens wird in dieser Arbeit ein Schwerpunkt auf die Interpretation der im besonders kalten Winter 1995/96 durchgeführten Messungen gelegt. Hierbei wurde eine starke, innerhalb des Polarwirbels räumlich sehr variable Chloraktivierung mit hohen ClO-Werten und geringen HCl-Konzentrationen in der unteren Stratosphäre zum Zeitpunkt der Meßkampagne gegen Ende Februar und Anfang März 1996 sowie ein ausgeprägter chemischer Ozonverlust im arktischen Polarwirbel im Vergleich zu außerhalb des Wirbels gemessenen Referenzwerten festgestellt. Die Messungen des chemisch inaktiven „Tracers“ N₂O ermöglichten hierbei eine Trennung chemischer und dynamischer Effekte und damit eine Zuordnung zwischen den innerhalb und außerhalb des Polarwirbels gemessenen Spurengasmischungsverhältnissen. Darüber hinaus konnten mit dem SUMAS/ASUR-Radiometer

¹ Submillimeter Atmospheric Sounder / Airborne Submillimeter SIS Radiometer

zeitlich hochaufgelöste Messungen des ClO-Tagesganges durchgeführt werden. Der Vergleich dieser Messungen mit Modellrechnungen bestätigt im Rahmen der Fehlergrenzen die im Modell angenommenen Reaktionskonstanten des für den Ozonabbau in der unteren Stratosphäre der Polarwirbel hauptverantwortlichen ClO-Dimer Mechanismus. Neben den Aktivitäten mit dem SUMAS/ASUR-Radiometer wurde die Weiterentwicklung der bestehenden Radiometertechnologie zu höheren Frequenzen hin betrieben. Mit dem im Rahmen einer Zusammenarbeit mit dem *Institut für Optoelektronik* der *Deutschen Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt (Oberpfaffenhofen)* entwickelten SUMAS/THOMAS²-System konnte das für die Atmosphärenchemie aufgrund seiner hohen Reaktivität besonders wichtige OH-Radikal erstmals anhand einer Rotationslinie bei 2514 GHz mit einem Heterodynsystem gemessen und somit die Leistungsfähigkeit der Heterodyntechnologie auch in diesem Spektralbereich unter Beweis gestellt werden.



Das für die atmosphärischen Messungen im Rahmen dieser Arbeit eingesetzte Forschungsflugzeug FALCON (D-CMET) der Deutschen Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt (DLR) auf dem schneebedeckten Rollfeld des Flugplatzes in Kiruna.

² Submillimeter Atmospheric Sounder / Terahertz Radiometer for OH Measurements in the Atmosphere

Abstract

Anthropogenic emissions of chlorine and bromine compounds into the atmosphere have damaged the stratospheric ozone layer, which protects life on earth against the harmful solar ultraviolet radiation. Investigating the mechanism of ozone destruction and monitoring the concentrations of the involved trace gases is therefore important at least for the next decades, before the stratospheric concentrations of these compounds are expected to decrease. Many of the gases relevant for ozone depletion show strong spectral features at submillimeter wavelengths and thus can be measured using appropriate remote sensing techniques. However, due to the high absorption of water vapor in this spectral range, measurements have to be carried out from a platform above the troposphere.

The airborne SUMAS/ASUR¹ heterodyne receiver – jointly developed by the *Institute of Environmental Physics* of the *University of Bremen* and the *Space Research Organization of the Netherlands (Groningen/Utrecht)* – measures thermal emission lines of a variety of stratospheric trace gases in the 624-654 GHz spectral range. Volume mixing ratio profiles can be retrieved from the spectrally resolved pressure broadened lines using non-linear least squares inversion techniques. Main target species are the radical ClO, which is very efficient for catalytic ozone destruction in the lower stratosphere of the winterly polar vortices, the chlorine reservoir gas HCl, the chemically inert tracer N₂O suitable to detect dynamical processes, and ozone. The instrument was used during several campaigns in yearly intervals between 1994 and 1997 to investigate the chemical composition of the Arctic and mid-latitude winter stratosphere. Besides the operation, optimization and characterization of the measurement system and the applied inversion method, this work focusses on the interpretation of measurements taken in the Arctic stratosphere during the unusually cold winter of 1995/1996. Large chemical ozone losses and a strong, spatially variable chlorine activation with high ClO and low HCl mixing ratios were observed in the lower stratosphere inside the polar vortex at the time of the campaign during February and March 1996. Measurements of the chemically inactive trace gas N₂O allowed to use ozone measurements from just outside the vortex as reference to distinguish between chemical losses and transport effects such as the subsidence of air inside the vortex. The very sensitive SUMAS/ASUR receiver was also used to take measurements of the diurnal variation of ClO with a high temporal resolution. A comparison of these measurements to model calculations confirmed the reaction constants used in the model for the ClO-dimer cycle, which is the most important mechanism for ozone depletion in the lower stratosphere of the polar vortices.

Besides these activities with the SUMAS/ASUR system, radiometer technology has been

¹ Submillimeter Atmospheric Sounder / Airborne Submillimeter SIS Radiometer

extended to even higher frequencies within a joint project with the *Institute of Optoelectronics* of the *German Aerospace Research Facilities (Oberpfaffenhofen)*. With the newly developed SUMAS/THOMAS² receiver the suitability of heterodyne technology for measuring atmospheric trace gases at terahertz frequencies has been proven. For the first time the detection of a rotational line of the atmospheric OH-radical, playing a major role in atmospheric chemistry due to its high reactivity, was possible with a heterodyne system measuring near 2514 GHz.

²Submillimeter Atmospheric Sounder/ Terahertz Radiometer for OH Measurements in the Atmosphere

Inhaltsverzeichnis

Überblick	i
Abstract (Engl.)	iii
Inhalt	1
Einleitung	7
Ziel der Arbeit	8
I	11
1 Erdatmosphäre und Ozonschicht	13
1.1 Aufbau der Atmosphäre	13
1.1.1 Hydrostatische Approximation	14
1.1.2 Adiabatischer Temperaturgradient	15
1.1.3 Strahlungsinduzierte Prozesse	17
1.1.4 Vertikaler Temperaturverlauf in der Atmosphäre	22
1.1.5 Zirkulation der mittleren Atmosphäre	24
1.1.6 Potentielle Vorticity	26
1.2 Stratosphärische Spurengase	27
1.2.1 Ozon	27
1.2.2 Katalysatoren des Ozonabbaus	29

1.2.3	Quellgase	30
1.2.4	Reservoirgase	32
1.2.5	Gestörte Chemie in den Winterpolarregionen	33
1.2.6	Globale Ozonbeobachtungen und -trends	35
1.2.7	Methodik, Meßverfahren und Modellierung	36
2	Passive Submillimeterwellen-Radiometrie	39
2.1	Meßprinzip	40
2.2	Meßgröße	41
2.3	Kalibration des Atmosphärensignals	42
2.4	Systemempfindlichkeit	44
2.5	Systemstabilität	45
2.6	Empfängerkomponenten	46
3	Bestimmung von Spurengasprofilen aus druckverbreiterten Emissionslinien im Submillimeterwellenbereich	51
3.1	Modellierung atmosphärischer Emissionsstrahlung im Submillimeterwellenbereich	52
3.1.1	Strahlungstransfer im Submillimeterwellenbereich	52
3.1.2	Der Absorptionskoeffizient	53
3.1.3	Validierung des Strahlungstransportmodells	62
3.2	Inversion der Strahlungstransfergleichung	64
3.2.1	Problemstellung	64
3.2.2	Das Inversionmodell	65
3.2.3	Die Optimal-Estimation Methode	66
3.2.4	Fehleranalyse	67

II	71
4 624-654 GHz:	
Das SUMAS/ASUR-Instrument	73
4.1 Aufbau des SUMAS/ASUR-Experiments	74
4.1.1 Der ASUR-Empfänger	75
4.1.2 Das SUMAS-Backend: Spektralanalyse und Experimentsteuerung	79
4.1.3 Einbau in das Forschungsflugzeug	82
4.2 Kalibrations- und Systemmessungen	83
4.3 Zusammenfassung: Das SUMAS/ASUR-Instrument	88
5 SUMAS/ASUR: Datenanalyse	91
5.1 Datenvorverarbeitung	92
5.2 Anpassung des Inversionsverfahrens	93
5.2.1 Höhenstützstellen	94
5.2.2 Allgemeine Eingabeparameter	94
5.2.3 ClO – 649.448 GHz	97
5.2.4 HCl – 625.917 GHz und O ₃ – 625.372 GHz	98
5.2.5 O ₃ – 647.840 GHz	99
5.2.6 N ₂ O – 627.752 GHz	100
5.2.7 N ₂ O – 652.833 GHz	103
5.3 Auflösung und Fehler der Messungen	104
5.4 Datenvergleiche	106
5.4.1 ClO	106
5.4.2 HCl	109
5.4.3 N ₂ O	111
5.4.4 Ozon	112
5.5 Zusammenfassung: Datenanalyse	114

6	SUMAS/ASUR: Meßkampagnen und Ergebnisse	115
6.1	Ergebnisse vorangegangener Kampagnen	115
6.2	Die SUMAS/ASUR Meßkampagne 1996	118
6.2.1	Meteorologische Situation im Winter 1995/96	119
6.2.2	Zeitraum der Kampagne	120
6.2.3	Vergleich mit 3D-Modell	121
6.2.4	Chloraktivierung in der Arktis	121
6.2.5	Räumliche Variabilität am Wirbelrand	124
6.2.6	Räumliche Variabilität innerhalb des Polarwirbels	134
6.2.7	Ozonabbau im arktischen Winter 1995/96	137
6.3	Die arktische Stratosphäre im Winter 1997	143
6.4	6-Jahres Vergleich für ClO- und HCl	146
6.5	Messungen des ClO-Tagesgangs	148
6.5.1	Motivation	148
6.5.2	Planung und Durchführung der SUMAS/ASUR-Messungen . . .	151
6.5.3	Vergleich mit 1D-Modell	156
6.6	Zusammenfassung: Meßkampagnen und Ergebnisse	161
III		165
7	2513-2533 GHz: Das SUMAS/THOMAS-Radiometer	167
7.1	Motivation	168
7.2	Aufbau des SUMAS/THOMAS-Experiments	169
7.2.1	Der THOMAS-Empfänger	170
7.2.2	Das SUMAS-Backend 1994	172
7.2.3	Das 2.5 THz-Flugzeugfenster	172
7.3	Atmosphärische Messungen	173

7.4	Datenanalyse	176
7.4.1	Allgemeine Eingabeparameter	176
7.4.2	H ₂ O – 2531.917 GHz	177
7.4.3	OH – 2514.321 GHz	178
7.5	Zusammenfassung: Das SUMAS/THOMAS-Radiometer	180
8	Zusammenfassung und Ausblick	181
8.1	Zusammenfassung der Arbeit	181
8.2	Fazit und Ausblick	185
A		189
A.1	Das ASUR Lokaloszillator- und PLL-System	189
A.2	Spektrallinien im ASUR-Frequenzbereich	191
A.3	Die SUMAS-Filterbank	192
A.4	Spektrallinien im THOMAS-Meßbereich	194
A.5	Das 2.5 THz-Flugzeugfenster	194
Literaturverzeichnis		199
	Abbildungsverzeichnis	215
	Tabellenverzeichnis	219

Einleitung

Die Emissionen von Gasen und Aerosolen anthropogener Natur seit Beginn der Industrialisierung haben zu einer Belastung globalen Ausmaßes für die das Leben auf der Erde in vielfältiger Weise schützende Atmosphäre geführt. Die Beeinflussung der Strahlungsbilanz des Klimasystems aufgrund der Freisetzung von Treibhausgasen durch Verbrennungsprozesse führt zu einer Erhöhung der mittleren Temperatur der Erdatmosphäre, deren Größenordnung allerdings noch nicht mit Sicherheit angegeben werden kann. Der erst 1987 durch das Montrealer Protokoll begrenzte Eintrag von Chlor- und Bromverbindungen in die Atmosphäre hat zu einer Abnahme der vor der ultravioletten Sonnenstrahlung schützenden stratosphärischen Ozonschicht geführt, die vor allem in mittleren und hohen Breiten beobachtet wird. Seit Ende der siebziger Jahre wird zudem ein sich jährlich im September und Oktober wiederholender, immer ausgeprägter werdender starker Ozonabbau über der Antarktis festgestellt, das sogenannte Ozonloch. Da die Fluorchlorkohlenwasserstoffe und Halone erst etwa 5 Jahre nach deren Freisetzung am Erdboden in die Stratosphäre gelangen, um dort durch die stärkere ultraviolette Strahlung aufgespalten zu werden und ihre ozonzerstörende Wirkung zu entfalten, wird mit einer Zunahme der Belastung der Stratosphäre durch Chlor und Brom bis zum Ende des 20. Jahrhunderts gerechnet. Mit einer Erholung der Ozonschicht kann somit selbst bei Einhaltung des Montrealer Protokolls und seiner Ergänzungen, die einen Bann der meisten als Ozonkiller identifizierten Gase bis spätestens 2005 vorsieht, aufgrund der langen Lebensdauern der für die Ozonzerstörung verantwortlichen Spurengase in der Stratosphäre nicht vor Mitte des nächsten Jahrhunderts gerechnet werden. Dem Erforschen und Verstehen der dynamischen und chemischen Prozesse der stratosphärischen Ozonzerstörung sowie der Überwachung des Zustandes der Ozonschicht und der Konzentrationen der für die Ozonchemie wichtigen Spurengase auch hinsichtlich ihres klimarelevanten Potentials kommt somit noch auf lange Sicht eine besondere Bedeutung zu.

Ziel der Arbeit

Viele für die Stratosphärenchemie relevante Spurengase besitzen gerade im Submillimeterwellenbereich¹ ausgeprägte spektrale Signaturen und sind daher dort mit Fernerkundungsverfahren besonders gut meßbar.

Ziel dieser Arbeit ist daher

- zunächst die **Bereitstellung und Optimierung von flugzeuggestützten Heterodynmeßsystemen** zur Bestimmung von Höhenverteilungen dieser Spurengase. Die Messungen müssen aufgrund der hohen Wasserdampfabsorption in diesem Spektralbereich von einem Träger oberhalb der Troposphäre durchgeführt werden. In den Jahren 1994–1997 wurde in insgesamt ca. 50 Meßflügen auf dem deutschen Forschungsflugzeug Falcon mit drei unterschiedlichen Meßsystemen bei 500 GHz, 624–654 GHz sowie 2.5 THz eine beträchtliche Menge an Daten hinsichtlich der Zusammensetzung der Stratosphäre gewonnen. Diese Arbeit konzentriert sich auf die Meßsysteme bei 650 GHz und 2.5 THz.
- Verfahren zur Bestimmung der Spurengasgehalte aus den druckverbreiterten Emissionslinien der verschiedenen gemessenen Moleküle müssen insbesondere in Hinblick auf die Überlagerung der detektierten Linien durch angrenzende Spektrallinien angepaßt werden. Die **Entwicklung, Anpassung und Optimierung von Methoden zur Datenanalyse** für die durchgeführten Messungen ist deshalb ein weiteres wichtiges Ziel dieser Arbeit.
- Letztlich soll durch die **Interpretation einiger ausgewählter Messungen** das Wissen über den Zustand der arktischen polaren Stratosphäre in den vergangenen Wintern vertieft werden.

In den ersten drei Kapiteln, die den ersten Teil bilden, wird das für das Verständnis der Arbeit notwendige Hintergrundwissen bereitgestellt:

In **Kapitel 1** wird zunächst eine allgemeine Einführung in die physikalischen Grundlagen bezüglich des Aufbaus der Atmosphäre gegeben. Desweiteren werden hier die chemische Zusammensetzung sowie die grundlegenden Transportmechanismen mit Hinblick auf die Ozonverteilung in der Stratosphäre erläutert.

Kapitel 2 befaßt sich mit der allgemeinen Beschreibung des Heterodyn-Meßverfahrens und gibt einen grundlegenden Einblick in die Submillimeterwellenradiometrie.

Das Prinzip der Bestimmung atmosphärischer Parameter wie Mischungsverhältnisse der Spurengase, Druck und Temperatur beruht auf dem Vergleich der gemessenen Spektren

¹ Der Submillimeterspektralbereich umfaßt den Frequenzbereich $\nu = 300 \text{ GHz} - 3 \text{ THz}$. Dies entspricht dem Wellenlängenbereich zwischen $\lambda = 1 \text{ mm}$ und $\lambda = 100 \mu\text{m}$, oder auch dem Wellenzahlbereich $10 - 100 \text{ cm}^{-1}$.

mit einem Modell des Strahlungstransfers im entsprechenden Spektralbereich. Ziel des Inversionsverfahrens ist es, durch eine optimale Anpassung der Eingangsparameter des Strahlungstransfermodells eine möglichst gute Übereinstimmung der gemessenen mit den modellierten Spektren zu erzielen. Das Strahlungstransportmodell für den Submillimeterbereich sowie das für die Bestimmung der Spurengasgehalte eingesetzte Inversionsverfahren werden in **Kapitel 3** beschrieben.

Im zweiten Teil der Arbeit wird nach einer detaillierten Darstellung des Aufbaus des SUMAS/ASUR Meßsystems (624-654 GHz) in **Kapitel 4** zunächst auf die erforderliche Anpassung der Inversionsverfahren für die Bestimmung der Höhenprofile von ClO, HCl, N₂O und Ozon in **Kapitel 5** eingegangen. Anschließend werden in **Kapitel 6** die mit diesem Instrument durchgeführten Meßkampagnen dargestellt, bevor eine Interpretation und Diskussion ausgewählter Messungen aus den Jahren 1996 und 1997 mit Hinblick auf den Zustand der polaren Stratosphäre im arktischen Winter erfolgt.

Das **Kapitel 7** im dritten Abschnitt der Arbeit befaßt sich schließlich mit der Weiterentwicklung der bestehenden Radiometertechnologie in einen höheren Spektralbereich zur Messung weiterer Spurenstoffe. Mit dem Einsatz eines 2.5 THz-Radiometers zur Messung des Hydroxylradikals in der Stratosphäre wurde dabei technisches Neuland betreten.

Abschließend werden die erzielten Ergebnisse noch einmal zusammengefaßt dargestellt und ein **Ausblick** auf zukünftige Entwicklungen und Möglichkeiten gegeben.

Teil I

Kapitel 1

Erdatmosphäre und Ozonschicht

Die Atmosphäre ist eine verglichen mit dem Erdradius von etwa 6378 km dünne gasförmige Hülle um die Erde. Durch die Gravitation gebunden wird sie mit zunehmender Höhe nahezu exponentiell dünner und bildet somit einen mehr oder weniger fließenden Übergang zwischen Erde und Weltraum. Im Höhenbereich bis 50 km sind bereits 99.9 % ihrer Masse enthalten. Die trockene Atmosphäre ist zu 78.08 % aus Stickstoff und zu 20.95 % aus Sauerstoff zusammengesetzt. Der Rest besteht fast ausschließlich aus Argon (0.93 %) und Kohlendioxid (0.035 %). Im Gegensatz zu diesen Hauptbestandteilen der Atmosphäre sind alle anderen Gase wie z.B. Ozon nur in Spuren enthalten. Auch Wasser ist in der Atmosphäre trotz seiner insgesamt großen Masse sehr variabel und vor allen Dingen in der Troposphäre bedeutend, während sein Mischungsverhältnis oberhalb der Tropopause sehr klein wird. Aufgrund ihrer Zusammensetzung und den hieraus resultierenden klimatologischen und strahlungsabschirmenden Eigenschaften ist die Atmosphäre eine unabdingbare Voraussetzung für das Bestehen allen Lebens auf der Erde. Im folgenden Abschnitt soll zunächst eine Beschreibung der allgemeinen Struktur der Atmosphäre und deren wichtigsten Eigenschaften erfolgen, bevor näher auf die chemischen und photochemischen Prozesse betreffend der stratosphärischen Ozonschicht eingegangen wird.

1.1 Aufbau der Atmosphäre

Um die Zirkulation in der Atmosphäre vollständig zu beschreiben müssen im Grunde die allgemeinen Gleichungen der Fluidodynamik, also Newtons Gesetz der Bewegung, sowie die Gleichungen für Energie- und Massenerhaltung (1. Hauptsatz der Thermodynamik bzw. Kontinuitätsgleichung), herangezogen werden. Durch geeignete Approximationen können dann praktische Beziehungen für eine einfache Beschreibung des Aufbaus der Atmosphäre erfolgen. Kurze Abrisse hierzu sind zum Beispiel in [Brasseur & Solomon], [Roedel], [Iribarne] oder ausführlicher in [Holton] angegeben.

1.1.1 Hydrostatische Approximation

Mit der allgemeinen Bewegungsgleichung wird zunächst die Wirkung von externen Kräften, hervorgerufen durch den Druckgradienten, die Gravitation, die Reibung und die Erdrotation, auf ein betrachtetes Luftpaket beschrieben:

$$(1.1) \quad \frac{d\mathbf{v}}{dt} = \underbrace{-\frac{1}{\rho}\nabla p}_{\text{Druckgradient}} - \underbrace{2\boldsymbol{\omega} \times \mathbf{v}}_{\text{Coriolisbeschleunigung}} + \underbrace{\mathbf{g}}_{\text{Gravitation}} + \underbrace{\mathbf{F}_r}_{\text{Reibung}}$$

In der hier für ein mit der Erde rotierendes Bezugssystem dargestellten Form stellt \mathbf{v} die Geschwindigkeit des Luftpakets, p den Druck, ρ die Dichte, $\boldsymbol{\omega}$ die Winkelgeschwindigkeit der Erde, \mathbf{g} die Schwerebeschleunigung sowie \mathbf{F}_r die Reibungskraft pro Masseneinheit dar. Diese Gleichung kann im sphärischen Koordinatensystem in 3 skalare Gleichungen für die Kräfte in meridionaler, zonaler und vertikaler Richtung zerlegt werden.

Für die *Hydrostatische Approximation* wird nun angenommen, daß die wichtigsten in vertikaler Richtung auf eine infinitesimal dünne Schicht der Dicke dz wirkenden Kräfte, die Gravitation sowie ihr entgegengerichtet die aufwärts wirkende Druckgradientenkraft sind:

$$(1.2) \quad dp(z) = -g(z) \cdot \rho(z) dz$$

Hierbei ist $\rho(z)$ die Dichte und $g(z)$ die Schwerebeschleunigung in der Höhe z . Bei den in der Atmosphäre vorherrschenden Drücken und Temperaturen gilt die Zustandsgleichung für ideale Gase

$$(1.3) \quad p = \frac{n \cdot R \cdot T}{V} = \frac{R \cdot T}{M} \cdot \rho \quad \text{mit} \quad \rho = \frac{n \cdot M}{V}$$

und man erhält durch Einsetzen für die Dichte ρ eine Beziehung zwischen dem atmosphärischen Druck und der Temperatur:

$$(1.4) \quad \frac{dp(z)}{p(z)} = -\frac{g(z) \cdot M}{R \cdot T(z)} dz$$

T ist die Temperatur, R die Universale Gaskonstante, n die Molzahl im Volumen V und M das Molargewicht des betrachteten atmosphärischen Gases. Durch nachfolgende In-

Integration kann schließlich folgende Gleichung für den Druck in der Höhe z abgeleitet werden, die *barometrische Höhenformel*:

$$(1.5) \quad p(z) = p_0 \exp \left(- \int_{z(p_0)}^z \frac{dz}{H(z)} \right) \quad \text{mit} \quad H(z) = \frac{R \cdot T(z)}{g(z) \cdot M}$$

$H(z)$ wird als *Skalenhöhe* bezeichnet und gibt die Höhe an, bei der der Druck auf einen Anteil von $\frac{1}{e} \approx 0.37$ bezogen auf seinen ursprünglichen Wert p_0 abgefallen ist, nimmt man Temperatur und Schwerebeschleunigung als näherungsweise konstant mit der Höhe an. Da nun jedes Gas der Luft der idealen Gasgleichung entsprechend seiner eigenen molaren Masse M gehorcht, sollten die leichteren Moleküle in größeren Höhen und die schwereren in niedrigeren Höhen der Atmosphäre vorherrschen. Die Region oberhalb von etwa 80-100 km, wo dieserart Gleichgewicht erreicht werden kann wird auch als *Heterosphäre* bezeichnet. Darunter jedoch, in der sogenannten *Homosphäre*, sorgen dynamische Mechanismen für eine gute Durchmischung der atmosphärischen Gase. Da nun gemäß dem Gesetz von Dalton der Gesamtdruck p eines idealen Gases gleich der Summe der Teildrücke p_i seiner Komponenten ist, gilt Gleichung (1.5) auch für das Gemisch der atmosphärischen Gase mit einem mittleren Molargewicht von $M_{ave} = 28.97 \frac{g}{mol}$. Für die Hauptbestandteile der Atmosphäre mit einem konstanten Mischungsverhältnis ist die mittlere Skalenhöhe in der Homosphäre gleich der Skalenhöhe für Luft und beträgt ca. 7 ± 1 km.

1.1.2 Adiabatischer Temperaturgradient

Aus der allgemeinen Bewegungsgleichung kann also mittels der *Hydrostatischen Approximation* eine einfache Beziehung für den Druck in Abhängigkeit von der Höhe abgeleitet werden.

Der *1. Hauptsatz der Thermodynamik* besagt indessen, daß die Änderung der inneren Energie dU eines Luftpaketes gleich der Summe der zu oder abgeführten Wärme dQ und der verrichteten Expansions- oder Kompressionsarbeit dW ist: $dU = dQ + dW \iff C_v dT = dQ - p dV$. Dabei ist C_v die spezifische Wärmekapazität bei konstantem Volumen, die durch $C_p = C_v + R$ mit der spezifischen Wärmekapazität bei konstantem Druck verknüpft ist. Mit Hilfe des Universalen Gasgesetzes aus (1.3) und Normierung auf die Molekülmasse gemäß $\frac{C_p}{M} = c_p$ kann diese Gleichung umgeschrieben werden zu

$$(1.6) \quad c_p \frac{dT}{dt} - \frac{1}{\rho} \frac{dp}{dt} = Q'$$

Dabei stellt $Q' = \frac{1}{nM} \frac{dQ}{dt}$ die Erwärmungsrate pro Masseneinheit dar, die aufgrund von

diabatischen Prozessen wie z.B. dem Freiwerden von latenter Wärme bei der Verdunstung von Wasserdampf oder der Strahlungserwärmung durch die UV-Absorption von Ozon zustande kommt (siehe auch Abschnitt 1.1.3).

Für adiabatische Bewegungen eines Luftpaketes ohne Energieaustausch mit der Umgebung gilt $Q' = 0$ und man erhält durch Einsetzen des Universalen Gasgesetzes (1.3) für ρ und nachfolgender Integration

$$(1.7) \quad \frac{dT}{T} = \frac{R}{C_p} \frac{dp}{p} \implies \frac{T}{P^{\frac{R}{C_p}}} = \text{const.} = \frac{\Theta}{P_0} \implies \Theta = T \left(\frac{P_0}{P} \right)^{\frac{R}{C_p}}$$

die Definitionsgleichung für die *potentielle Temperatur* Θ , einer Erhaltungsgröße adiabatischer Prozesse. Die potentielle Temperatur entspricht anschaulich der Temperatur eines Luftpaketes welches adiabatisch auf einen Referenzdruck, meist $P_0=1000$ hPa, gebracht wird. Für trockene Luft kann schließlich mit $\frac{R}{C_p} = 0.286$ die Abnahme der Lufttemperatur mit der Höhe durch Differentiation von (1.7) nach der Höhe z und Einsetzen der *Hydrostatischen Gleichung* (1.2) für $\frac{dp}{dz}$ zu

$$(1.8) \quad \frac{dT}{dz} = -\frac{g}{c_p} \approx -10 \frac{K}{km}$$

berechnet werden. Aufgrund diabatischer Prozesse $Q' \neq 0$ kann der Temperaturgradient jedoch erheblich vom trocken-adiabatischen Fall abweichen. Die in den untersten Bereichen der Erdatmosphäre wichtige Freisetzung latenter Wärme bei der Kondensation von Wasserdampf führt zu kleineren feuchtadiabatischen Temperaturgradienten zwischen 4 und 7 K km^{-1} . Berücksichtigt man auch die globale Zirkulation, so kann eine mittlere Temperaturabnahme von nur etwa 6.5 K km^{-1} ermittelt werden [Wayne].

Der Temperaturgradient spielt für die vertikale Stabilität der atmosphärischen Schichtung eine wichtige Rolle. Ändert sich die Temperatur mit der Höhe langsamer als die Temperatur eines adiabatisch verschobenen Luftpaketes, d.h. die potentielle Temperatur steigt mit der Höhe an, so neigt das Luftpaket dazu in seine ursprüngliche Ruhelage zurückzukehren und man spricht von einer stabilen Schichtung. Insbesondere wird z.B. bei einem positiven Temperaturgradienten der vertikale Austausch der Luftmassen stark unterdrückt. Ist der Temperaturabfall jedoch größer als im adiabatischen Fall, so kommt es zur Ausbildung einer Konvektion. Die durch diese konvektive Instabilität hervorgerufenen vertikalen Mischungsprozesse führen insgesamt wiederum zu einem Temperaturverlauf entsprechend der feucht- oder trockenadiabatischen Temperaturgradienten und stellen einen wichtigen Mechanismus für die vertikale Durchmischung in der unteren Atmosphäre dar.

1.1.3 Strahlungsinduzierte Prozesse

Die spektrale Energieverteilung der Sonne außerhalb der Atmosphäre umfaßt einen Wellenlängenbereich von ca. 1 nm bis 3500 nm mit einem maximalen Energiefluß bei etwa 500 nm im sichtbaren Bereich. Die aufgenommene Energie wird von der Erdatmosphäre entsprechend ihrer niedrigeren Temperatur als Wärmestrahlung im längerwelligen Spektralbereich mit Maximum zwischen 8-13 μm wieder abgegeben (siehe Abbildung 1.1). Um den vertikalen Verlauf des Temperaturprofils in der Atmosphäre verstehen zu können, müssen die Wechselwirkungsmechanismen von elektromagnetischen Wellen mit den atmosphärischen Gasen, also Absorption und Emission sowie Streuung und Brechung, als weitere diabatische Prozesse in Betracht gezogen werden. Die verschiedenen frequenzabhängigen Prozesse sollen im folgenden kurz erläutert werden bevor auf die Grundlagen des Strahlungstransfers eingegangen wird.

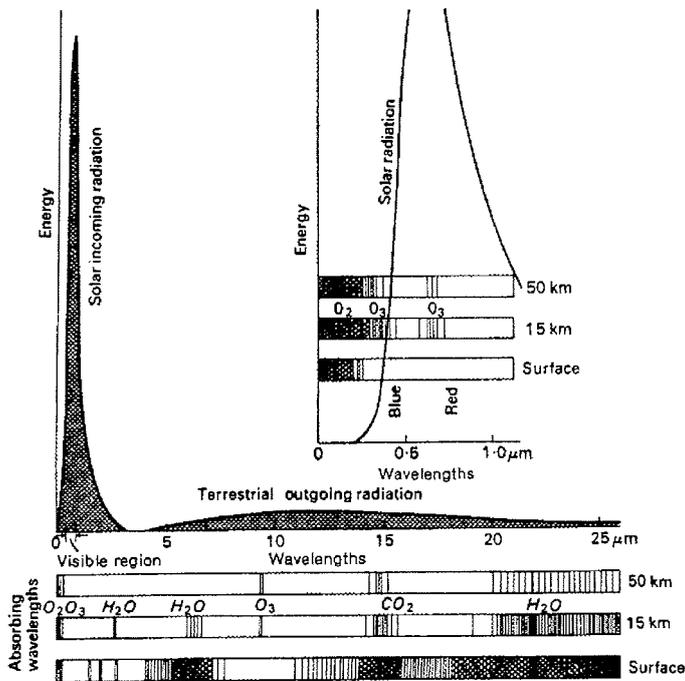


Abbildung 1.1: Spektrale Verteilung der von der Erde empfangenen solaren Strahlung im Vergleich zur emittierten Strahlung (aus [Iribarne]).

Resonante Absorption tritt auf, wenn eine elektromagnetische Welle mit einem Gasmolekül wechselwirkt und dabei Energie auf das Molekül übertragen wird. Das Molekül kann wiederum Energie in Form von Strahlung emittieren, um von einem angeregten Zustand in einen Zustand niedrigerer Energie überzugehen. Da die Energiezustände von Gasmolekülen diskret sind, führt die resonante Emission und Absorption elektromagnetischer Strahlung zu einer wohldefinierten Spektrallinie bei einer Frequenz ν_{ul} für die gilt:

$$(1.9) \quad \nu_{ul} = (E_u - E_l)/h$$

Hierbei sind E_u und E_l die internen Energien des oberen bzw. des unteren am Übergang beteiligten molekularen Zustands, h ist das Planck'sche Wirkungsquantum. Resonante Wechselwirkungen aufgrund der molekularen und atomaren Übergänge entsprechen im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich zumeist elektronischen Anregungen der Atome und Moleküle, Übergänge zwischen Vibrationszuständen sind überwiegend für Spektrallinien im Infraroten verantwortlich. Rotationsübergänge entsprechen geringeren Energien und führen zu Spektrallinien im längerwelligen Mikrowellen- und Submillimeterwellenbereich. Da Übergänge gleichzeitig in den verschiedenen Formen der potentiellen Energie auftreten können, kommt es zur Ausbildung von Vibrations-Rotationsbanden im Infraroten sowie elektronischen Bandensystemen im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich.

Nichtresonante Wechselwirkungen treten in der Atmosphäre z.B. bei der photochemischen Dissoziation auf. Dabei folgt auf eine elektronische Anregung der Zerfall einer chemischen Bindung, wenn die Energie der absorbierten Strahlung die Bindungsenergie des Moleküls übersteigt. Die überschüssige Energie geht hierbei als kinetische Energie auf die Bruchstücke über und trägt somit zur Erwärmung des atmosphärischen Gasgemisches bei. Typischerweise entsprechen die niedrigsten Bindungsenergien atmosphärischer Moleküle den Strahlungsenergien im sichtbaren und nahen UV Spektralbereich, sodaß die solare Strahlung im längerwelligen Bereich zwar zur Erwärmung führt, nicht jedoch die chemische Zusammensetzung verändert. Im Infraroten, Submillimeter- und Mikrowellenbereich kann eine kontinuierliche nichtresonante Absorption aufgrund der weit entfernt vom Linienzentrum nur sehr langsam abfallenden Linienflügel starker Spektrallinien (Wasserdampf oder Sauerstoff im Mikrowellenbereich), sowie ein nichtresonantes Stickstoffkontinuum beobachtet werden. Diese Effekte sind allerdings nur in der unteren Atmosphäre bei großen Drücken von Bedeutung.

Das Strahlungsfeld in der Atmosphäre kann mittels der Energie dE , die von der Position r pro Zeiteinheit dt und Frequenzintervall $d\nu$ entlang eines Vektors s in einen Raumwinkel $d\Omega$ abgestrahlt wird, beschrieben werden (siehe Abbildung 1.2). Für die hieraus resultierende *spezifische Strahlungsintensität* $I_\nu(r, s)$ mit Einheit [$\text{W Hz}^{-1} \text{m}^{-2} \text{steradian}^{-1}$]

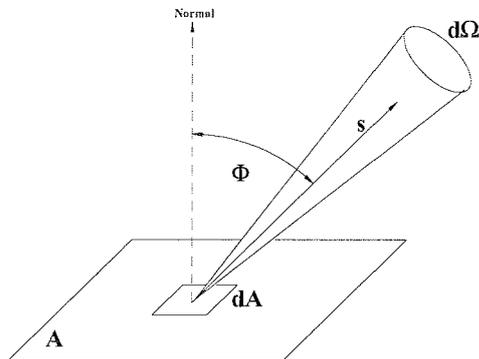


Abbildung 1.2: Als Strahlungsintensität (oder „Radiance“) wird die von einer emittierenden Oberfläche A in Richtung s pro Raumwinkel $d\Omega$, Fläche dA und Frequenz ν abgestrahlte Leistung bezeichnet.

– im üblichen Sprachgebrauch der Astrophysik auch als *Radiance* bezeichnet – soll im folgenden einfachheitshalber die Bezeichnung *Intensität* verwendet werden.

$$(1.10) \quad I_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s}) = \frac{dE}{dA \cos \Phi \, d\Omega \, d\nu \, dt}$$

Der Cosinus des Winkels Φ zwischen der Normalen der abstrahlenden Fläche dA und dem Richtungsvektor s stellt die Projektion von dA in Richtung s dar und wird gleich 1 wenn die Abstrahlung senkrecht zur Fläche dA erfolgt.

Gemäß dem *Lambert-Beer'schen Gesetz* ist nun die Abschwächung einer, sich in einem absorbierenden Medium entlang eines Weges s fortbewegenden elektromagnetischen Welle der Intensität $I_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$, proportional zur Teilchendichte n des Mediums. Weiterhin kann das Medium – hier das atmosphärische Gasgemisch – Strahlung entsprechend einer Quellfunktion $J_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ emittieren, welche ebenfalls proportional zur Teilchendichte sei. Man erhält für die Änderung der Intensität entlang eines infinitesimalen Weges ds am Ort \mathbf{r} in Richtung s die sogenannte *Schwartzschild-Gleichung* für den **Strahlungstransfer**

$$(1.11) \quad dI_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s}) = -k_\nu(\mathbf{r}) (I_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s}) - J_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})) \, ds \quad .$$

wobei $k_\nu(\mathbf{r})$ [m^{-1}] der zur Teilchendichte proportionale, stark frequenzabhängige Extinktionskoeffizient des Mediums ist.

Kurzwellige Strahlung in der Atmosphäre unterhalb $4 \mu\text{m}$ stammt fast ausschließlich von der Sonne. $J_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ stellt hier die zusätzlich zu $I_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ auftretende Strahlung aufgrund von Streuung an den atmosphärischen Molekülen aus anderen Richtungen als s

dar. Der Extinktionskoeffizient $k_\nu(\mathbf{r})$ kann ausgedrückt werden aus der Summe aus Absorptionskoeffizient $\alpha_\nu(\mathbf{r})$ und Streukoeffizient $s_\nu(\mathbf{r})$ oder alternativ mittels dem Produkt aus dem sogenannten Absorptionsquerschnitt $\sigma_{\alpha,\nu}(\mathbf{r})$ bzw. dem Streuquerschnitt $\sigma_{s,\nu}(\mathbf{r})$ mit der Teilchenzahldichte N :

$$(1.12) \quad k_\nu(\mathbf{r}) = \alpha_\nu(\mathbf{r}) + s_\nu(\mathbf{r}) = N \cdot \sigma_{\alpha,\nu}(\mathbf{r}) + N \cdot \sigma_{s,\nu}(\mathbf{r})$$

Während an Molekülen in der Atmosphäre aufgrund des Rayleigh-Kriteriums $2\pi R \ll \lambda$ überwiegend Rayleigh-Streuung auftritt, muß mit größeren Teilchenradien R von Wassertropfen oder Aerosolen Mie-Streuung bei der Bestimmung von $J_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ (Richtungsabhängigkeit) und $\sigma_{s,\nu}(\mathbf{r})$ (Abschwächung) berücksichtigt werden.

Bei **längeren Wellenlängen** als $4 \mu\text{m}$ hingegen dominieren die thermischen Emissionen atmosphärischer Moleküle. Insbesondere wird die Streuung unbedeutender, wenn Moleküle, Aerosole, Eiskristalle und auch die Wassertropfen der Wolken klein ($\leq 10 \mu\text{m}$) im Vergleich zu den Wellenlängen werden. $J_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ kann dann unter der Annahme von lokalem thermodynamischen Gleichgewicht (LTE)¹ durch die Strahlungsintensität $B_\nu(T)$, die ein ausgedehnter Schwarzer Körper der Temperatur T pro Einheitsfläche, Einheitsraumwinkel und Einheitsfrequenzbandbreite bei der Frequenz ν gemäß der *Planckfunktion* abstrahlt, beschrieben werden:

$$(1.13) \quad J_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s}) = B_\nu(T(\mathbf{r}), \mathbf{s}) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \cdot \frac{1}{\exp \frac{h\nu}{k_b T(\mathbf{r})} - 1}$$

k_b ist die Boltzmannkonstante. Um letztlich die interessierenden **Heiz- oder Kühlraten** aufgrund radiativer diabatischer Prozesse in der Atmosphäre zu berechnen muß der gesamte Energiefluß $\mathbf{F}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ durch die Fläche dA in Richtung \mathbf{s} betrachtet werden, welcher durch das Integral der Intensität $I_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ über den Raumwinkel Ω gegeben ist:

$$(1.14) \quad \mathbf{F}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s}) = \int_{4\pi} I_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s}) \cos\Phi \, d\Omega$$

Die Strahlungsenergie, die nun pro Volumen- und Frequenzeinheit in der Atmosphäre absorbiert wird und damit zur Aufheizung beiträgt, ist durch die Divergenz des Energieflusses $\nabla \cdot \mathbf{F}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ gegeben und wird auch als Heizrate pro Frequenzintervall mit

¹ Lokales thermodynamisches Gleichgewicht kann in einem Höhenbereich von 0-80 km angenommen werden, da hier die Wahrscheinlichkeit für Stöße ausreichend groß ist um die Besetzung der Energieniveaus entsprechend der Boltzmann Statistik zu gewährleisten. In größeren Höhen werden die Besetzungszahlen der Energieniveaus durch Strahlungsprozesse bestimmt, sodaß für jede Frequenz ν im sogenannten *Monochromatischen Strahlungsgleichgewicht* die absorbierte Energie durch die emittierte Energie ausgeglichen wird.

Maßeinheit $[\text{W Hz}^{-1} \text{m}^{-3}]$ bezeichnet. Bezieht man die Heizrate mittels Division durch die Dichte $\rho(\mathbf{r})$ auf die Masseneinheit und integriert über die Frequenz, so gilt

$$(1.15) \quad Q'(\mathbf{r}) = \frac{1}{\rho(\mathbf{r})} \int \nabla \cdot \mathbf{F}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{s}) d\nu .$$

Durch Einsetzen in den 1. Hauptsatz der Thermodynamik aus Gleichung (1.6) kann bei Kenntnis des Energieflusses an der Position \mathbf{r} die Änderung der Temperatur aufgrund von Strahlungsheizung oder -kühlung bestimmt werden. Zur Ermittlung des Energieflusses für vorgegebene Spurengas- und Aerosolverteilungen in der Atmosphäre muß der Strahlungstransfer durch die Atmosphäre gemäß der Schwarzschildgleichung berechnet werden. Da diese Rechnungen über einen sehr breiten Frequenzbereich erfolgen, müssen hinsichtlich der gegenwärtig erzielbaren Rechnerleistungen geeignete Parametrisierungen und Vereinfachungen (spektrale Auflösung) eingeführt werden. Mittels aufwendiger Modellrechnungen kann schließlich die Heizrate $Q'(\mathbf{r})$ sowie die Temperatur als Funktion der Höhe, Breite und Länge modelliert werden. Für mehrdimensionale Modellrechnungen dieserart ist allerdings auch der multidimensionale Transport zu berücksichtigen, der in Abschnitt 1.1.5 in seinen Grundzügen beschrieben wird.

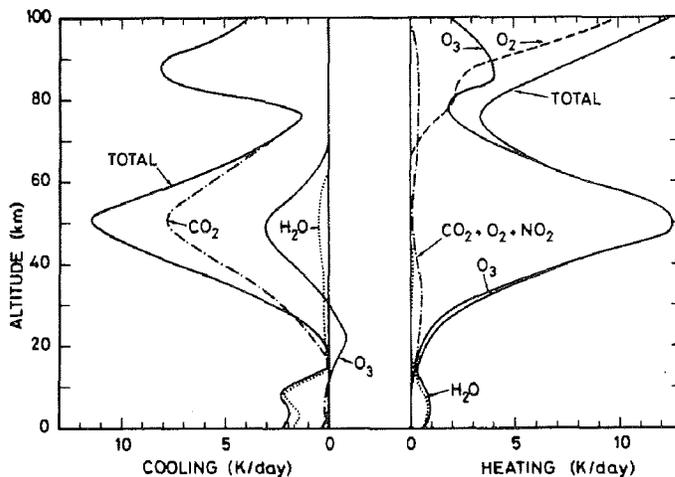


Abbildung 1.3: Vertikale Verteilung der durch die Absorption der kurzwelligeren solaren Strahlung verursachten Heizraten im Vergleich zu den atmosphärischen Kühlraten aufgrund der längerwelligen Emissionen (nach [Brasseur & Solomon]).

Als Beispiel für ein Ergebnis solch eines mathematischen Modells zur Analyse der thermischen Effekte von solarer und terrestrischer Strahlung zeigt Abbildung 1.3 Heiz- und

Kühlraten in Abhängigkeit von der Höhe, aufgeschlüsselt in die Beiträge der für den Strahlungshaushalt wichtigsten atmosphärischen Gase. [Brasseur & Solomon] [Elachi] [Goody & Yung] [Iribarne] [Kraus] [Wayne].

Im folgenden Abschnitt soll nun eine qualitative Beschreibung des tatsächlich beobachteten vertikalen Temperaturverlaufs in der Atmosphäre erfolgen, welcher durch die zuvor dargestellten Grundlagen der Thermodynamik und des Strahlungstransfers erklärt werden kann.

1.1.4 Vertikaler Temperaturverlauf in der Atmosphäre

Durch die verschiedenen frequenzabhängigen Wechselwirkungsmechanismen des atmosphärischen Gasgemisches mit der Strahlung der Sonne sowie die durch Strahlungsprozesse induzierte Konvektion kommt es zur Ausbildung mehrerer Höhenbereiche gegensätzlichen Temperaturverlaufs in der Atmosphäre (siehe Abbildung 1.4).

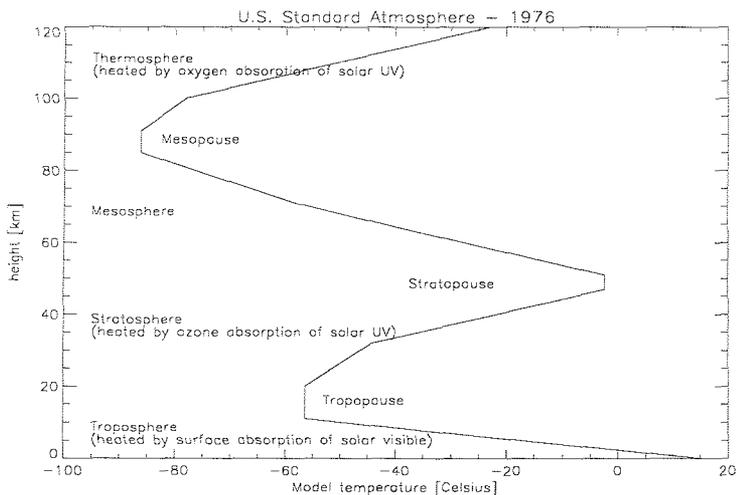


Abbildung 1.4: Vertikaler Verlauf der Temperatur in der Erdatmosphäre (aus [Urban, 1993]).

Die wichtigsten diabatischen Prozesse hinsichtlich der Temperaturstruktur sind hierbei wie in Abbildung 1.3 dargestellt durch die Differenz zwischen der Strahlungsheizung bei der Absorption im ultravioletten Spektralbereich durch Ozon und Sauerstoffmoleküle sowie der Strahlungskühlung durch Abstrahlung in den Weltraum im Infraroten durch Ozon, CO₂ und Wasserdampf gegeben.

Ein Teil der solaren Energieeinstrahlung dringt im atmosphärischen Fenster bei Wellenlängen von 400 nm bis 800 nm bis zum Erdboden durch und führt dort zu einer Erwärmung der Erdoberfläche, welche die Wärme wieder an die Atmosphäre abgibt. Durch die trocken- und feuchtadiabatische Expansion bzw. Kompression beim Aufsteigen bzw. Absinken der Luftpakete kommt es zu einem ausgehend von der Bodentemperatur mit zunehmender Höhe nahezu linearen Temperaturabfall von -5 K km^{-1} bis -10 K km^{-1} für feuchte bzw. trockene Luft in der untersten Region der Atmosphäre, der sogenannten **Troposphäre**. Neben der unmittelbaren Entstehung fühlbarer Wärme wird ein großer Teil der am Erdboden freigesetzten Wärme zur Verdunstung von Wasser verbraucht und bei der Wolkenbildung wieder freigesetzt. Dieser Transport latenter Wärme hält das Wettergeschehen in Gang und macht über dem Land etwa die Hälfte, über den Ozeanen sogar ca. 85-90% der Wärmeabgabe an die Luft aus. Trotzdem der längerwellige Anteil der Sonneneinstrahlung oberhalb 800 nm größtenteils durch Wasserdampf und CO_2 in der Troposphäre absorbiert wird, kommt es im oberen Bereich der Troposphäre netto zur Strahlungskühlung durch die Abstrahlung des Wasserdampfes im Infraroten Spektralbereich, deren Maximum letztlich grob die Obergrenze der Troposphäre bestimmt. Eine Umkehr des Temperaturgradienten erfolgt in der *Tropopause*, welche sich in den Tropen aufgrund des großen Wasserdampfgehaltes der Troposphäre und den hohen Temperaturen am Erdboden in einer großen Höhe von ungefähr 17 km bei einer infolgedessen relativ kalten Temperatur von ca. -70°C befindet, während sie in den trockenen Polarregionen in nur etwa 8 km Höhe bei einer höheren Temperatur um -50°C liegt. Diese niedrige Temperatur verhält sich wie eine Kühlfalle für den troposphärischen Wasserdampf, sodaß nur geringe Mengen Wasserdampf in höhere Schichten gelangen können.

Während in der Troposphäre die Temperatur vorwiegend durch das Gleichgewicht zwischen adiabatischer Konvektion und UV-Absorption bestimmt ist, spielt in der darüber gelegenen sogenannten **mittleren Atmosphäre** das Strahlungsgleichgewicht zwischen UV-Absorption und Emission im Infraroten Spektralbereich die entscheidende Rolle. Die photochemische Dissoziation des Spurengases Ozon mit seinem maximalen Mischungsverhältnis in ca. 30-35 km Höhe bedingt durch die kurzwellige solare Strahlung im Bereich der Hartley- und Hugginsbanden zwischen 200 nm und 310 nm ist hier die Hauptwärmequelle. Die Strahlungskühlung wird durch die Abstrahlung der $15 \mu\text{m}$ -Bande von CO_2 im Infraroten beherrscht, zudem leisten Ozon bei $9.6 \mu\text{m}$ und auch Wasserdampf mit seiner $80 \mu\text{m}$ Bande noch einen Beitrag. In der **Stratosphäre** führen diese Effekte zu einem Temperaturanstieg bis auf ca. 0°C in der in etwa 50 km Höhe gelegenen *Stratopause*. Im Gegensatz zur Troposphäre kommt es bedingt durch den positiven Temperaturgradienten von bis zu 5 K km^{-1} (in den Tropen) zu einer relativ austauscharmen Schichtung. In der **Mesosphäre** fällt die Temperatur wiederum bis auf ein Minimum von ungefähr -100°C in der *Mesopause* in ca. 75-80 km ab, bevor die Absorption durch Dissoziation molekularen Sauerstoffs im Schumann-Runge Bereich zwischen 100-200 nm die dominierende Rolle zu spielen beginnt.

Die Temperatur in der **Thermosphäre** steigt dadurch zunächst wieder stetig an, bis sich

ein konstanter Wert, welcher sich in Abhängigkeit von Tageszeit und Breite zwischen 400°C und 2000°C bewegen kann, einstellt.

Bei Wellenlängen kürzer als 150 nm führt die solare Einstrahlung zudem zur Ionisierung der Atmosphärgase und somit zur Bildung der sogenannten **Ionosphäre** im Höhenbereich oberhalb ca. 80 km. [Brasseur & Solomon] [Fabian] [Iribarne].

1.1.5 Zirkulation der mittleren Atmosphäre

Die globale Verteilung der Spurengase in der Erdatmosphäre, im besonderen auch des stratosphärischen Ozons als wichtigstem Spurengas der mittleren Atmosphäre, wird neben chemischen und strahlungsinduzierten Prozessen auch durch dynamische Mechanismen bestimmt. Zum Verständnis der dabei resultierenden Spurengasverteilungen sollen in diesem Abschnitt kurz die grundlegenden Transporteffekte in der mittleren Atmosphäre beschrieben werden.

Aufgrund des positiven Temperaturgradienten in der Stratosphäre wird der **vertikale Austausch** mit der Troposphäre effektiv unterdrückt und die Zirkulation in der mittleren Atmosphäre kann in erster Näherung unabhängig vom dynamischen troposphärischen Wettergeschehen betrachtet werden. Die Zeitkonstante² für vertikale Durchmischung bewegt sich in der unteren Stratosphäre in einer Größenordnung von Monaten bis Jahren, in der Mesosphäre beträgt sie immerhin noch Tage.

Die mittlere **meridionale Zirkulation** in der Stratosphäre ist geprägt durch den Transport troposphärischer Luft aufwärts durch die äquatoriale Tropopause bis in höhere Breiten der Winterhemisphäre, wobei der polwärts gerichtete Transport durch die mittlere Atmosphäre durch ein ständiges Absinken gekennzeichnet ist. Diese quasi-horizontale Strömung – das Absinken beträgt in etwa 1 km auf 1000 km horizontalem Transport – findet mit einer entsprechenden Zeitkonstanten von Monaten in der Stratosphäre bis Tagen in der oberen Mesosphäre statt und ist zudem ein wichtiger Mechanismus für die vertikale Durchmischung der austauscharm geschichteten Stratosphäre. In der Mesosphäre ist die mittlere Meridionalströmung durch eine einzelne Zirkulationszelle mit aufsteigender Luft in höheren Breiten der Sommerhemisphäre und quasi-horizontalem Transport in Richtung polarer Breiten der Winterhemisphäre bestimmt. Ausgeglichen wird der Transport in die Stratosphäre höherer Breiten durch Einmischung stratosphärischer Luft in die Troposphäre sowie nachfolgender irreversibler vertikaler Durchmischung.

Dem meridionalen Transport in der mittleren Atmosphäre ist eine stärkere **zonale Strömung** aufgrund der Erdrotation überlagert, deren Zeitkonstante sich in der Größenordnung von wenigen Tagen pro 1000 km bewegt und zu zonal symmetrischen Wirbeln westlicher Strömung in der Winterhemisphäre sowie östlicher Strömung in der Sommerhemisphäre führt. Die maximalen zonalen Windgeschwindigkeiten sind in einer Höhe von ca.

²Hiermit ist die Lebensdauer bezüglich von Transporteffekten ähnlich der chemischen Lebensdauer der Bestandteile der Luft (Abfall auf $1/e$ ausgehend von einem Anfangswert) gemeint.

60 km zu finden. Fluktuationen um die mittleren zonalen Strömungen aufgrund aufbrechender planetarer Wellen, sogenannte *Eddies*, spielen als relativ schnelle Effekte eine wichtige Rolle für Durchmischung und meridionalen Transport.

Oberhalb ca. 30 km fällt die **mittlere Temperatur der Stratosphäre** relativ gleichförmig vom Sommerpol zum Winterpol hin ab. In der unteren Stratosphäre ist sie jedoch durch Prozesse in der oberen Troposphäre beeinflusst und nimmt demnach minimale Werte oberhalb der Tropopause der äquatorialen Gebiete an, während Temperaturmaxima sowohl in den Polregionen der Sommerhemisphäre wie auch in mittleren Breiten der Winterhemisphäre bei ca. 45° zu finden sind.

Der starke polwärts abfallende Temperaturgradient in der Winterhemisphäre geht einher mit einem ausgeprägten westlichen Wirbel, dem **polaren Vortex**. Dieser bildet sich im Herbst in den Winterpolarregionen und kann bis ins Frühjahr bestehen bleiben bevor die normale saisonale Umkehr stattfindet.

In der **nördlichen Winterhemisphäre** beobachtet man jedoch gelegentlich auch eine als *Sudden stratospheric warming* bekannte plötzliche großskalige Stratosphärenenerwärmung (bis ca. 40 K bei 50 hPa), die innerhalb weniger Tage den meridionalen Temperaturgradienten umdrehen und somit nach Zusammenbrechen der vorherrschenden westlichen Strömung auch zu einem östlichen Zirkumpolarstrom führen kann. Diese in der Nordhemisphäre auftretenden Erscheinungen werden auf sich in die Stratosphäre fortpflanzende Störungen planetarer Wellen, welche aufgrund der topographischen Struktur an der Erdoberfläche in der Nordhemisphäre stärker als in der Südhemisphäre angeregt werden, zurückgeführt. In der Südhemisphäre ist der **winterliche Wirbel über der Antarktis** relativ ungestört gegenüber Austauschprozessen dieserart, sodaß sich hier aufgrund der stärkeren Isolation der Luftmassen kältere Temperaturen als in der arktischen Stratosphäre entwickeln können.

Die Dynamik in der **äquatorialen Stratosphäre** ist durch eine Wechselwirkung der mittleren zonalen Strömung mit sich vertikal fortpflanzenden Schwerewellen bestimmt, die zu einer Umkehr der vorherrschenden Windrichtung alle 24-30 Monate, der *Quasi-biennalen-Oszillation (QBO)*, führt. Die um den Äquator symmetrische zonale Strömung umfaßt einen Breitenbereich von ungefähr 12° und ist durch eine Abwärtsbewegung um ca. einen Höhenkilometer pro Monat, welche in der unteren Stratosphäre mit einer Abschwächung der Strömung verbunden ist, charakterisiert. Die QBO nimmt über den meridionalen Transport auch Einfluß auf dynamische Prozesse in höheren Breiten. Westliche Winde in der äquatorialen unteren Stratosphäre gehen einher mit einem schwachen, warmen Vortex in der nördlichen Winterhemisphäre. In der östlichen Phase führt die QBO hingegen zu kalten, intensiveren winterlichen Polarwirbeln in beiden Hemisphären [WMO, 1995]. [Brasseur & Solomon] [Holton].

1.1.6 Potentielle Vorticity

Aufgrund der Bedeutung der winterlichen Polarwirbel für die Austauschprozesse polarer stratosphärischer Luft mit Luft aus mittleren Breiten soll an dieser Stelle der Begriff der *potentiellen Vorticity* (PV) oder auch potentiellen Wirbelstärke eingeführt werden, mit dem die dynamischen Eigenschaften der Luft quantitativ erfaßt werden können. Die PV stellt ein Maß für die Erhaltung der Rotation der Luftmassen unter adiabatischen Bedingungen, d.h. unter Vernachlässigung von Reibungseffekten, dar. *Ertel's potentielle Vorticity* ist gemäß [Nash, 1996] durch

$$(1.16) \quad PV = \frac{1}{\rho} (\nabla \times \mathbf{v} + 2\boldsymbol{\omega}) \nabla \Theta = -\mathbf{g} \cdot (\nabla \times \mathbf{v} + 2\boldsymbol{\omega})_z \frac{\partial \Theta}{\partial p}$$

gegeben. Hierbei ist g wieder die Erdbeschleunigung, ρ die Dichte, p der Druck, \mathbf{v} das dreidimensionale Windfeld, $\boldsymbol{\omega}$ die Winkelgeschwindigkeit der Erde und Θ die potentielle Temperatur aus Gleichung (1.7). Die *Absolute Vorticity* $(\nabla \times \mathbf{v} + 2\boldsymbol{\omega})$ ist dabei durch die Summe der Erdrotation mit der Rotation des Windfeldes gegeben, der Index z steht für die z -Komponente.

Linien gleicher PV auf Flächen konstanter potentieller Temperatur (Isentropen) stellen somit Trajektorien adiabatischer Bewegungen in der Atmosphäre dar. Dabei sind die Luftmassen der Polarwirbel durch hohe PV-Werte gekennzeichnet und der Wirbelrand kann z.B. durch den maximalen Gradienten der PV auf einer betrachteten Isentropenfläche definiert werden.

Da *Ertel's potentielle Vorticity* eine Funktion der potentiellen Temperatur ist und in der Stratosphäre daher mit der Höhe zunimmt, kann alternativ mit $PV' = PV(\Theta/\Theta_0)^{-9/2}$ eine modifizierte, mit der Höhe nahezu konstante potentielle Vorticity eingeführt werden, welche ebenfalls eine Erhaltungsgröße für adiabatische Prozesse ist [Lait, 1994].

PV-Daten basierend auf täglichen Analysen meteorologischer Radiosonden- und Satellitendaten werden für diverse Isentropenflächen z.B. vom Europäischen Zentrum für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF) bereitgestellt. Da die potentielle Vorticity eine indirekt aus den Windfeldern abgeleitete Größe ist, sind hochaufgelöste Karten der PV oft verrauscht, so daß kleinräumige Strukturen nur schlecht identifiziert werden können. Ein Verfahren um hochaufgelöste PV-Karten im nachhinein zu erzeugen ist das *Reverse Domain Filling (RDF)* -Verfahren. Hierbei wird eine große Anzahl von Luftpaketen entlang ihrer aus den gemessenen Windfeldern bestimmten Trajektorien bis zu 10 Tage zurückverfolgt. Anschließend können die PV-Werte an den Endpunkten der Trajektorien in den interessierenden Zeitraum zurückversetzt werden, wobei die Feinstruktur der adiabatisch angenommenen Luftbewegung dabei rückwirkend sichtbar wird [Sinnhuber et al., 1996]. Mit Blick auf den weniger stabilen arktischen Polarwirbel erlaubt dieses Verfahren eine räumlich feinere Analyse der Austauschprozesse mit Luftmassen von außerhalb des Wirbels.

1.2 Stratosphärische Spurengase

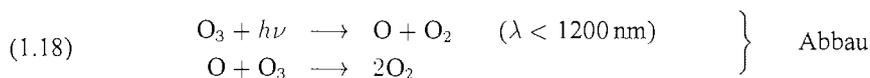
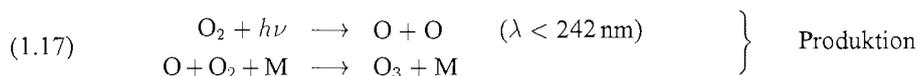
Trotz ihres im Vergleich zu den Hauptbestandteilen der Atmosphäre geringen Vorkommens spielen die sogenannten *Spurengase* eine sehr wichtige Rolle für den Strahlungshaushalt der Atmosphäre. Emissionen von Stickstoff-, Chlor- und Bromverbindungen anthropogenen Ursprungs stören jedoch das chemische und dynamische Gleichgewicht in der Stratosphäre und verursachen einen Abbau der vor der energiereichen ultravioletten Strahlung schützenden Ozonschicht.

1.2.1 Ozon

Stratosphärisches Ozon nimmt unter den Spurengasen eine herausragende Stellung ein, da es durch die effektive Absorption im Bereich der Hartley- und Hugginsbanden (200-310 nm) neben dem Sauerstoff Herzberg- (200-242 nm) sowie Schumann-Runge-Kontinuum (100-200 nm) die Biosphäre vor der harten ultravioletten Strahlung der Sonne schützt. UV-Strahlung wirkt biologisch aktiv und schädigt die ihr ausgesetzten Zellen von Pflanzen, Menschen und Tieren und kann somit Hautkrebs verursachen. Desweiteren greift die Strahlung auch einfache Lebensformen wie das Meeresplankton, welches am Anfang der maritimen Nahrungskette steht, an. Ozon spielt zudem eine wichtige Rolle für die atmosphärische Dynamik, da es wie bereits dargestellt für die Erwärmung der Stratosphäre verantwortlich ist.

Chapman-Gleichungen

Bereits im Jahre 1930 wurde von [*Chapman*] ein nur auf Sauerstoff beruhendes Reaktionssystem zur chemischen Erklärung der Ozonschicht vorgeschlagen:



Das Ozon, die dreiatomige Form des Sauerstoffs, wird hierbei durch die Reaktion von molekularem mit atomarem Sauerstoff unter der Einwirkung eines beliebigen Stoßpartners M , der die überschüssige Energie mit sich fortträgt, gebildet. Zunächst müssen also Sauerstoffmoleküle aufgespalten werden, was durch die Strahlung im Herzberg und

Schumann-Runge Bereich ($\lambda < 242$ nm) hervorgerufen wird (Gleichungen (1.17)). Aufgrund der kleineren Bindungsenergien kann das O_3 Molekül durch Photolyse bei größeren Wellenlängen ($\lambda < 1200$ nm) wieder abgebaut werden. Der gebildete atomare Sauerstoff befindet sich im Grundzustand $O(^3P)$ oder bei Wellenlängen kleiner als 310 nm in einem angeregten Zustand höherer Energie $O(^1D)$. Als zweite Abbaureaktion ergibt die Stoßreaktion mit atomarem Sauerstoff beider möglichen Zustände zwei Sauerstoff Moleküle (1.18). Berücksichtigte man ausschließlich die *Chapman-Gleichungen*, so ergäbe sich im photochemischen Gleichgewicht eine Ozonschicht mit einem Konzentrationsmaximum bei etwa 25 km Höhe, wobei die Konzentration in allen Höhenbereichen aufgrund der unterschiedlichen Sonneneinstrahlung von den Tropen zu den Polen hin abfiele.

Transportprozesse

Aufgrund der **allgemeinen Zirkulation** in der mittleren Atmosphäre wird jedoch permanent Ozon aus dem Hauptquellgebiet, der Stratosphäre der Tropen, in höhere Breiten und gleichzeitig niedrigere Höhen transportiert. Dies führt zu einer dynamisch bedingten Anreicherung ozonreicher Luftmassen in der unteren Stratosphäre höherer Breiten, da in diesen Höhenbereichen die photochemische Lebensdauer des Ozons in etwa ein Jahr beträgt und damit lang gegenüber der mit dem mittleren meridionalen Transport verbundenen Zeitkonstante ist. Erst in den Höhenbereichen der oberen Stratosphäre oberhalb 35 km beträgt die Lebensdauer von Ozon weniger als eine Stunde, sodaß sich hier ein photochemisches Gleichgewicht einstellen kann und Transportprozesse keine Rolle spielen.

Messungen des globalen Ozons durch satellitengestützte Instrumente ergeben tatsächlich eine über das Jahr hinweg nahezu konstante minimale O_3 Gesamtmenge von um die 250 DU in den Tropen. 100 DU (Dobson Unit, nach [*Dobson*]) entsprechen hierbei einer Ozonschicht von 1 mm Dicke auf der Erdoberfläche bei Standardbedingungen³. In höheren Breiten nehmen die überwiegend durch Transport verursachten jahreszeitlichen Schwankungen zu. Es kommt im Widerspruch zur reinen Sauerstoffphotochemie nach Chapman zu dynamisch verursachten hohen Ozonsäulenwerten in polaren Bereichen (> 400 DU) mit Maximalwerten im Frühjahr, sieht man einmal von der als antarktisches Ozonloch bekanntgewordenen ebenfalls im Frühjahr stattfindenden Ozonzerstörung, welche durch heterogene Chlorchemie in Verbindung mit polaren Stratosphärenwolken katalysiert wird, ab (siehe Abbildung 1.5). Die beobachteten Variationen im Totalozon entstehen vorwiegend aufgrund der unterschiedlichen Mischungsverhältnisse in Höhen unterhalb 20 km.

Einige weitere dynamische Effekte sind hinsichtlich der Ozonverteilung in der mittleren Atmosphäre zu beachten: So beeinflusst die der **Quasi-biennalen-Oszillation** folgende periodische Variation des Ozons in der Stratosphäre der Tropen der Größenordnung

³ Druck: 1013 hPa, Temperatur: 298 K.

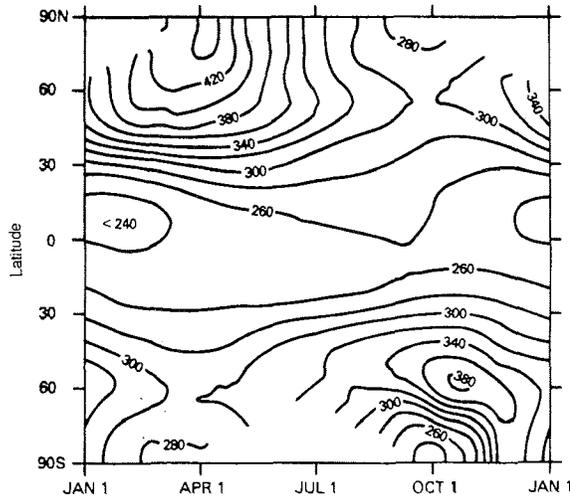


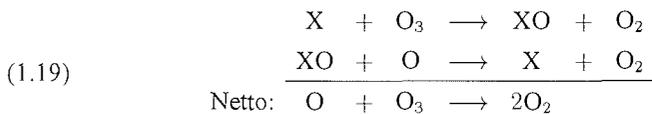
Abbildung 1.5: Jahreszeitliche Variation des mittleren zonalen Totalozons (in [DU]) aus Messungen des *Total Ozone Mapping Spectrometers* (TOMS) auf Nimbus 7 im Zeitraum Oktober 1978 - September 1983 (aus [Bowman & Krueger, 1985]).

5-10 DU über den mittleren meridionalen Transport auch den Ozongehalt in mittleren und hohen Breiten und führt zu Schwankungen von bis zu 20 DU [WMO, 1995]. Ferner kommt es bedingt durch das Auftreten von **Hoch- und Tiefdrucksystemen** in der Troposphäre und den daran gekoppelten Aufwärts- oder Absinkbewegungen zu Variationen der Tropopausenhöhe und somit aufgrund dem damit verbundenen adiabatischen horizontalen Aus- oder Einströmen zu Totalozonminima bzw. -maxima. Dieserart Fluktuationen im Totalozon können in der Größenordnung der jahreszeitlichen Ozonvariationen liegen und verdeutlichen die hohe dynamische Variabilität des Ozongehaltes in der Stratosphäre. Erwähnenswert wenn auch unbedeutender sind außerdem die Variation des Totalozons über den 11-jährigen **Zyklus der Sonnenaktivität**, welche kleiner als 3 % geschätzt wird [Brasseur & Solomon], sowie eine Rückkopplung aufgrund der periodisch in der Südhemisphäre auftretenden Erwärmung der Meeresoberflächentemperatur vor der Westküste Südamerikas, der **El Niño Southern Oscillation**, auf Atmosphäre und Ozongehalt (z.B. [Shiotani, 1992]). [Fabian] [Holton].

1.2.2 Katalysatoren des Ozonabbaus

Modelle der globalen Ozonverteilung errechnen jedoch auch unter Berücksichtigung der globalen Zirkulation um etwa 30 % zu hohe Ozonwerte, zieht man nur die von Chapman vorgeschlagenen auf Sauerstoff basierenden Reaktionen in Betracht. Weitere Ozonabbau-

mechanismen, wie die zuerst von [Bates & Nicolet, 1950] vorgeschlagenen katalytischen Abbauzyklen müssen hinzugezogen werden, um diese Diskrepanz aufzulösen:



Der Katalysator X wird wie die Nettoreaktion zeigt nicht in Mitleidenschaft gezogen und steht sofort wieder zur erneuten Ozonzerstörung bereit. Katalysatoren können also schon in sehr geringen Konzentrationen einen spürbaren Ozonabbau bewirken. Es handelt sich um Radikale wie H, OH, NO, Cl und auch Br, deren Abbauzyklen auch entsprechend als HO_x-, NO_x-, ClO_x- und BrO_x-Zyklus bezeichnet werden. Radikale sind Moleküle die in ihrer äußersten Schale ein ungepaartes Elektron besitzen und daher eine hohe Reaktionsfreudigkeit aufweisen. Der zuerst von [Crutzen, 1970] identifizierte NO_x-Zyklus (NO_x = NO + NO₂) ist besonders wichtig in der unteren Stratosphäre und bewirkt alleine einen zusätzlichen Ozonabbau um 25 % bezogen auf das Gesamt Ozon. Der HO_x-Zyklus (HO_x = H + OH + HO₂) dominiert in der oberen Stratosphäre und der Mesosphäre wo die Ozonkonzentrationen allerdings bereits sehr klein sind, während der ClO_x-Zyklus (ClO_x = Cl + ClO) unter normalen atmosphärischen Bedingungen im mittleren Höhenbereich von 35-45 km aufgrund der hier starken Photolyse der Chlor-Quellgase seine maximale ozonzerstörende Wirkung entfaltet.

Das Ozondefizit zwischen Messung und Modell kann durch die hier dargestellten katalytischen Zyklen als Ergänzung des Sauerstoff-Zyklus im wesentlichen aufgeklärt werden. Tatsächlich spielen jedoch auch andere nicht in dieses einfache Schema passende Reaktionsabfolgen eine Rolle, insbesondere kann über Verzweigungen zwischen den verschiedenen Zyklen die Wirkung hinsichtlich des Ozonabbaus wieder reduziert werden. [Wayne].

1.2.3 Quellgase

Alle katalytischen Zyklen treten auch in der natürlichen, unverschmutzten Stratosphäre auf, da die Radikale langlebigen troposphärischen Quellgasen entstammen, die wegen ihrer Reaktionsträgheit durch Mischungsprozesse in die Stratosphäre gelangen um dort von der kurzwelligen solaren Strahlung oder durch Reaktion mit angeregtem atomarem Sauerstoff oder dem Hydroxylradikal (OH) zerstört zu werden. Distickstoffoxid (N₂O) als Hauptquelle für die Stickoxide (NO_x) entsteht durch biologische Fäulnisprozesse am Erdboden. Quellgase für die HO_x-Radikale sind Wasserdampf (H₂O), Wasserstoff (H₂), Methan (CH₄) sowie Kohlenmonoxid (CO). Die vorwiegend im Ozean gebildeten Gase Methylchlorid (CH₃Cl) und Methylbromid (CH₃Br) stellen eine natürliche Hauptquelle

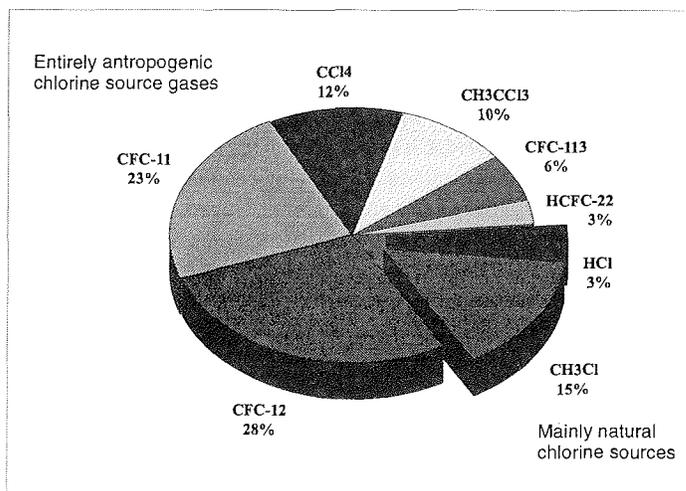


Abbildung 1.6: Relative Anteile der organischen Quellgase des stratosphärischen Chlors gemäß [WMO, 1995]. Die vorwiegend natürlichen Quellgase sind hierbei herausgezogen dargestellt.

der Chlor (ClO_x) und Brom (BrO_x) Radikale dar. In der heutigen Atmosphäre haben sich die Hintergrundkonzentrationen jedoch durch anthropogene Emissionen erheblich verändert. Insbesondere Chlor gelangt durch eine Reihe industriell hergestellter Quellgase wie z.B. der Fluormethane CFC-11 (CCl_3F) und CFC-12 (CCl_2F_2), eingesetzt als Kühlmittel und Treibgas für Spraydosen sowie zum Aufschäumen von Schaumstoffen, in die Stratosphäre [Molina & Rowland, 1974]. Inzwischen macht der Anteil des natürlichen Chlors nur noch einen Bruchteil des Gesamtchlors in der Stratosphäre aus. Halone, hauptsächlich als Feuerlöschmittel verwendete Verbindungen, die neben Chlor auch Brom-Atome enthalten (z.B. CF_3Br , CF_2ClBr), stellen neben dem zu 50% durch seine Verwendung als Pestizid in die Atmosphäre eingetragenen Methylbromid [Khalil *et al.*, 1993] eine anthropogene Hauptquelle für Brom in der Stratosphäre dar [Deters, 1996]. Auch N_2O weist in der Troposphäre gegenwärtig bei einem Mischungsverhältnis von ca. 315 ppbv ein Wachstum von etwa 0.5 ppbv/Jahr aufgrund anthropogener Aktivitäten auf. Während sich zur Zeit als Resultat des Montrealer Protokolls und seiner Ergänzungen die Zuwachsraten einiger der als Hauptozonkiller identifizierten Chlorfluormethane und Halone in der Troposphäre verringern, so nehmen andere als Ersatzstoffe verwendete Substanzen zu, welche allerdings aufgrund ihrer kürzeren troposphärischen Lebensdauer ein geringeres Potential für die Ozonerstörung aufweisen. Unter der Voraussetzung der Einhaltung der Protokolle wird die maximale Konzentration der organischen und anorganischen Chlor- und Bromverbindungen in der Stratosphäre erst mit einer Verzögerung von 4.5 ± 1 Jahren [Schmidt *et al.*, 1994] nach dem troposphärischen Peak dieser Gase im Jah-

re 1994 [Montzka et al., 1996], also gegen Ende der 90er Jahre erwartet [WMO, 1995]. Das Mischungsverhältnis des Gesamtchlors in der Stratosphäre in einer Höhe um 20 km beläuft sich in den Jahren 1996/97 demnach auf ungefähr den Wert des troposphärischen organischen Chlors (CCl_y) der Jahre 1991/92 von ca. 3.7-3.8 ppbv. Der anorganische Anteil ($\text{Cl}_y = \text{Cl} + 2\text{Cl}_2 + \text{ClO} + \text{OCIO} + 2\text{Cl}_2\text{O}_2 + \text{HOCl} + \text{HCl} + \text{BrCl} + \text{ClONO}_2$) am Gesamtchlor überwiegt in dieser Höhe mit ca. 92-94 % gegenüber den organischen Quellgasen [Woodbridge et al., 1995] [Clarmann et al., 1995]. Neuere Abschätzungen basierend auf SF_6 -Messungen deuten allerdings auf ein etwas höheres Alter der stratosphärischen Luft in 20 km Höhe von etwa 6-7 Jahren hin [A. Engel, persönliche Mitteilung, 1997], wonach die Maximalwerte des Gesamtchlors in dieser Höhe erst nach der Jahrtausendwende zu erwarten sind.

1.2.4 Reservoirgase

Durch die Zunahme bestimmter Quellgase in der Stratosphäre aufgrund anthropogener Einwirkungen wird die Konzentration der entsprechenden Radikale in der Stratosphäre

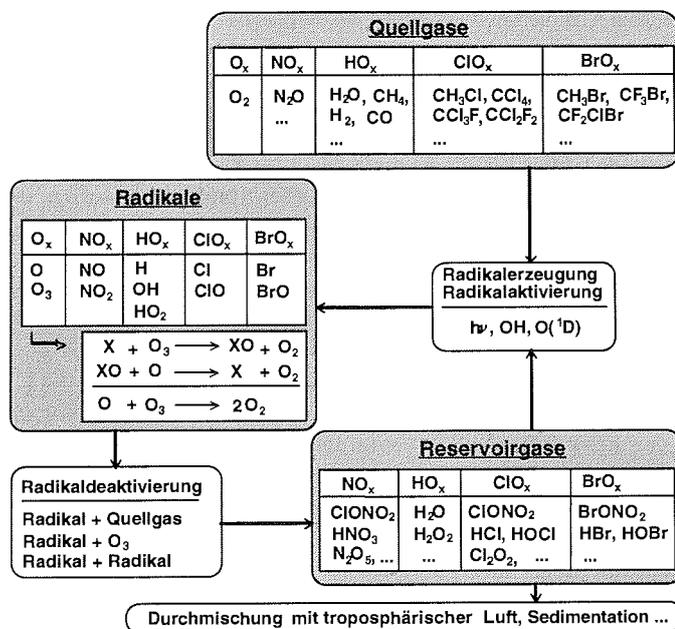


Abbildung 1.7: Schematische Darstellung der Radikalaktivierung und Deaktivierung in der Stratosphäre für die verschiedenen chemischen Familien der stratosphärischen Ozonchemie.

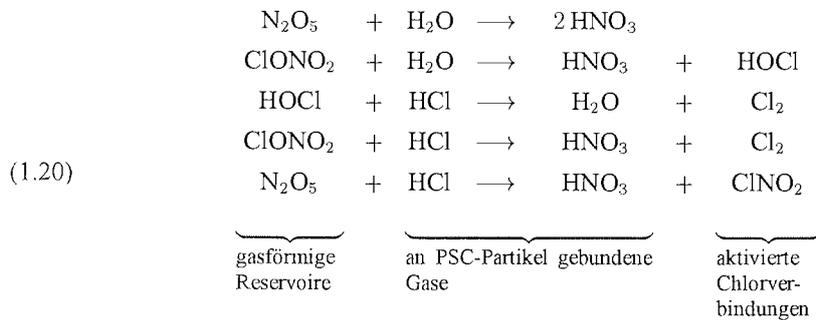
erhöht. Dies führt allerdings nicht notwendigerweise zu geringeren Ozonkonzentrationen, da die katalytischen Abbauzyklen auch untereinander verkoppelt sind. So entstehen durch die Reaktionen von Katalysatoren mit Katalysatoren, Quellgasen oder Ozon inaktive Reservoirsubstanzen, die keine ozonzerstörende Wirkung zeigen. Die Rückbildung der Radikale aus den Reservoirsubstanzen erfolgt durch Photolyse sowie durch Reaktion mit von im sonnenbeschienenen Teil der Atmosphäre gebildeten atomarem Sauerstoff sowie OH. Das Gleichgewicht zwischen Reservoir und Radikalen verschiebt sich demnach abhängig von der Sonneneinstrahlung, was je nach photochemischer Lebensdauer der einzelnen Gase große tageszeitliche Schwankungen zur Folge haben kann. Einige der Reservoirsubstanzen wie z.B. HCl, HNO₃ und H₂O₂ sind zudem leicht wasserlöslich und werden – einmal durch Mischungsprozesse in die Troposphäre gelangt – ausgerechnet, was im natürlichen stationären Gleichgewicht den Zustrom der Quellgase in die Stratosphäre kompensiert. In Abbildung 1.7 ist das Wechselspiel zwischen Radikalbildung und Deaktivierung für die verschiedenen involvierten chemischen Familien verdeutlicht. [Fabian].

1.2.5 Gestörte Chemie in den Winterpolarregionen

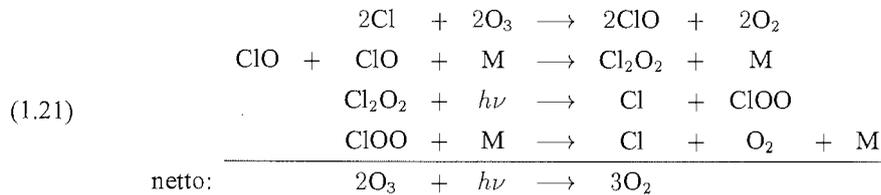
Die seit 1980 festgestellten großen Ozonverluste in der Stratosphäre über der Antarktis im Frühjahr können mit den reinen Gasphasenreaktionen nicht erklärt werden. Wie bereits im Abschnitt über die allgemeine atmosphärische Zirkulation erwähnt wurde, kommt es im Herbst in den Polarregionen aufgrund der zunehmenden Dunkelheit und der damit verbundenen Strahlungskühlung zur Bildung eines stratosphärischen Tiefdruckgebiets, dem polaren Wirbel. Die Isolation der Luftmassen in diesem Wirbel begünstigt das Auftreten extrem kalter Temperaturen und dadurch die Bildung von Polaren Stratosphärischen Wolken, sogenannten PSC's (Polar Stratospheric Clouds), in der unteren Stratosphäre. Man unterscheidet hierbei zwischen dem durch ternäre Kondensation von HNO₃, H₂SO₄ und H₂O gebildeten und bei Temperaturen um 195 K (bei 50 hPa \approx 20 km) zumeist zu festen Teilchen⁴ gefrierenden Typ I, sowie Eiswolken des Typs II, welche bei kälteren Temperaturen von ungefähr 185 K entstehen. Die auf den Oberflächen all dieser Partikel ablaufenden heterogenen Reaktionen führen zu einer Freisetzung aktiver Chlorsubstanzen aus den Hauptreservoirs HCl und ClONO₂. Diese Prozesse können für Luftpakete innerhalb des Wirbels während eines Tages oder schneller ablaufen. Hochgerechnet auf

⁴NAD: Nitric acid dihydrate (2H₂O·HNO₃) (fest),
NAT: Nitric acid trihydrate (3H₂O·HNO₃) (fest),
SAT: Sulfuric acid tetrahydrate (4H₂O·H₂SO₄) (fest),
STS: Supercooled ternary solution (H₂O/HNO₃/H₂SO₄) (flüssig).

die Polarwirbel kann dies zu einer vollständigen **Chloraktivierung** innerhalb weniger Tage führen [Newman *et al.*, 1993].



Sobald im polaren Frühling Sonnenlicht zur Photodissoziation zur Verfügung steht, werden die hierbei entstandenen Chlorverbindungen aufgespalten und es entstehen Cl, OH und NO₂. Der katalytische Chlorabbauzyklus gemäß Gleichung (1.19) bewirkt nur einen Bruchteil der beobachteten Ozonzerstörung, da bei den noch großen Sonnenzenitwinkeln nur wenig atomarer Sauerstoff in der unteren Stratosphäre gebildet wird. Wichtigster Mechanismus für den Ozonabbau ist hingegen der zuerst von [Molina & Molina, 1987] vorgeschlagene nur unter dem Einfluß von Licht wirksame **ClO-Dimer Mechanismus**:

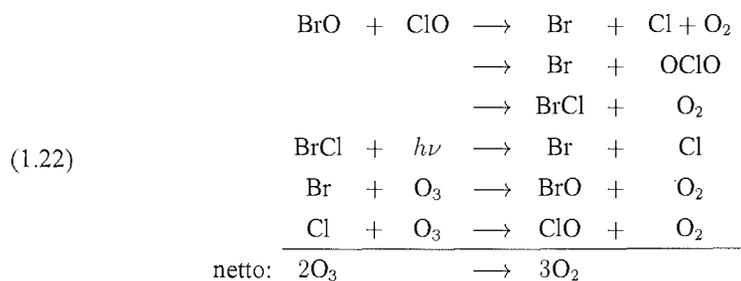


In der Nacht führt dieser Zyklus lediglich zur Bildung des Dimers Cl₂O₂, sowie zu einem geringen Anteil von nur etwa 1% des gesamten inorganischen Chlors Cl_y zur Bildung von OClO via ClO + O₃ → OClO + O₂ [Shindell, 1995]. Der tägliche Auf- und Abbau einer ClO-Schicht in der unteren Stratosphäre im Höhenbereich um 20 km innerhalb des polaren Wirbels ist ein Kennzeichen für diesen katalytischen Zyklus mit der Dimerformationsrate als begrenzenden Reaktionsschritt.

Die Chloraktivierung aufgrund heterogener Chemie an PSC-Partikeln geht insbesondere in der kälteren antarktischen Stratosphäre einher mit einer Denitrifizierung (bis zu 90%

des erhältlichen NO_y) oder auch Dehydrierung der Luft im Vortex aufgrund der Sedimentation von in den PSC-Partikeln gebundenem HNO_3 und H_2O . Eine rasche Rückbildung insbesondere des Reservoirgases ClONO_2 wird hierdurch verhindert.

Eine wichtige Rolle für den Ozonabbau im Polarwirbel spielt desweiteren ein **ClO-BrO-Mechanismus** [McElroy *et al.*, 1986], der für etwa 5-10% des Ozonabbaus verantwortlich gemacht wird:



Der OCIO bildende Reaktionweg, welches unter Einwirkung von Licht zu ClO und O zerfällt, trägt hierbei nicht zum Ozonabbau (= Abbau ungeraden Sauerstoffs) bei.

Das tatsächlich beobachtete Ausmaß der durch diese Mechanismen verursachten Ozonverluste unterliegt stark meteorologischen Faktoren und ist somit insbesondere im weniger stabilen arktischen Vortex von Jahr zu Jahr sehr variabel. Während das antarktische Ozonloch seit 1980 regelmäßig in jedem Frühjahr mit tendenziell steigender Intensität und Ausdehnung festgestellt wurde [WMO, 1995], so sind in der Arktis erst in jüngster Zeit vergleichbare, wenn auch räumlich und zeitlich begrenzte Ozonverluste von bis zu 50% beobachtet worden (z.B. [von der Gathen *et al.*, 1995], [Müller *et al.*, 1995]).

Bei steigenden Temperaturen im Frühjahr und damit verschwindenden PSC's wird die Chloraktivierung über die Reaktionen von Chlorradikalen mit NO_2 oder CH_4 schließlich auf Werte wie vor der Vortexbildung im Herbst reduziert, wobei aufgrund der in der Arktis weniger stark ausgeprägten Denitrifizierung dort im Gegensatz zur Antarktis zunächst mehr ClONO_2 als HCl entstehen kann, bevor sich Vorwinterwerte einpendeln [WMO, 1995] [Wehr *et al.*, 1995] [Douglass *et al.*, 1995].

1.2.6 Globale Ozonbeobachtungen und -trends

Messungen der globalen Ozonverteilung liegen aufgrund der Beobachtungen zahlreicher satellitengestützter Sensoren sowie bodengebundener Netzwerke über eine längere Zeitreihe vor und können unter Berücksichtigung von Effekten wie der Quasi-Biennialen-Oszillation oder dem 11-jährigen Sonnenzyklus zur Berechnung von langfristigen Trends

ausgenutzt werden (z.B. [Stolarski et al., 1991]). So ergibt eine Beurteilung der Messungen für den Zeitraum 1979-1994 für die mittleren Breiten (30° - 60°) beider Hemisphären im jährlichen Mittel einen Abwärtstrend im Totalozon von 4-5 % pro Dekade [WMO, 1995]. Der Trend des Ozonabbaus steigt hierbei von den Tropen, wo kein statistisch signifikanter Trend erkennbar ist, zu den Polen und weist zudem eine ausgeprägte jahreszeitliche Variation auf. In den Wintermonaten der mittleren nördlichen Breiten wurde mit 6 % pro Dekade ein besonders starker Ozonabwärtstrend festgestellt.

Neben den Ozonsäulenbeobachtungen stehen auch globale Messungen von Ozonvertikalprofilen zur Verfügung. Deren Analyse ergibt in einer Höhe von 20 km signifikante Ozonverluste von ca. 7 ± 4 % pro Dekade für die mittleren Breiten (30° - 50°), gemessen im Zeitraum 1979-1991. In der oberen Stratosphäre zwischen 35 und 45 km liegen die Verluste bei 5-10 % pro Dekade. Im Höhenbereich zwischen 25 und 30 km konnten dagegen keine meßbaren langfristigen Ozonverluste festgestellt werden [WMO, 1995].

1.2.7 Methodik, Meßverfahren und Modellierung

Die in ihrer Zielsetzung eher langfristig zur Überwachung der globalen Ozonverteilung angelegten Messungen satellitengestützter Instrumente sowie permanenter bodengestützter Netzwerke werden gerade in jünster Zeit nach der Entdeckung des antarktischen Ozonlochs im Jahre 1985 durch zahlreiche **Meßkampagnen** auf internationaler Ebene ergänzt, bei denen Fragestellungen hinsichtlich der chemischen und dynamischen Mechanismen des Ozonabbaus in polaren und mittleren Breiten im Vordergrund stehen. Die Messung vieler der interessierenden Spurengase in der Stratosphäre ist hierbei durch den Einsatz sehr unterschiedlicher Meßverfahren gewährleistet. Man unterscheidet prinzipiell zwischen In-Situ und Fernerkundungsverfahren. **In-Situ-Meßverfahren** sind, da die Spurengase vor Ort gesammelt und gemessen werden, auf Ballone oder spezielle, hochfliegende Stratosphärenflugzeuge als Träger angewiesen. Hierbei sei als wichtiges weltweit routinemäßig eingesetztes Verfahren auf die elektrochemischen Ozonsonden hingewiesen, welche neben Druck, Temperatur und relativer Feuchte Profildaten des atmosphärischen Ozongehaltes liefern. Das Meßprinzip dieser zumeist ballongetragenen Sonden beruht auf der Proportionalität des durch die Reaktion von Ozon mit Kaliumjodid erzeugten Stroms zur Ozonkonzentration. **Fernerkundungssensoren** hingegen nutzen die Wechselwirkungsmechanismen von elektromagnetischer Strahlung mit dem atmosphärischen Gasgemisch. Man unterteilt weiter in aktive (Radar/Lidar) und passive Sensoren, bei denen Sonne, Mond oder die Eigenemissionen der atmosphärischen Gase als Quelle der zu detektierenden Strahlung dienen. Diese wird während des Transports durch die Atmosphäre modifiziert und führt deshalb eine Signatur der atmosphärischen Zusammensetzung mit sich. Einige Moleküle wie z.B. Ozon können in vielen, andere aufgrund ihrer spektroskopischen Eigenschaften oder sehr geringen Konzentrationen nur in bestimmten Spektralbereichen gut gemessen werden. Neben flugzeug-, ballon-, oder

auch satellitengestützten Systemen kommen in Spektralbereichen geringer troposphärischer Absorption auch bodengestützte Fernerkundungsinstrumente zum Einsatz.

Parallel zu den Messungen dient die Entwicklung von chemischen und dynamischen **Modellen** zur möglichst realistischen Simulation der Vorgänge in der Stratosphäre sowie zur Prognose zukünftiger Entwicklungen. Durch den Vergleich der Modelle mit den durch Messungen gewonnenen Daten wird das vorhandene theoretische Wissen auf die Probe gestellt.

Ganz allgemein müssen die chemischen und dynamischen Kontinuitätsgleichungen aller betrachteten Moleküle simultan gelöst werden:

$$(1.23) \quad \frac{\partial n_j}{\partial t} = \sum_i P_{ij} - \sum_i L_{ij} n_j - \nabla \mathbf{v} n_j$$

P_{ij} und L_{ij} stellen hierbei die photochemischen Produktions- bzw. Verlustraten der Moleküle j dar, n_j ist die Konzentration, t die Zeit und \mathbf{v} die Windgeschwindigkeit. Der letzte Term stellt somit die Veränderung der Konzentration n_j innerhalb eines betrachteten Luftvolumens aufgrund von Transporteffekten dar. Für die Modelle werden **photochemische Module** verwendet, deren Aufgabe die Berechnung des Reaktionsgleichgewichts der an der Chemie beteiligten Gase ist. Um das System gekoppelter Differentialgleichungen hinsichtlich der momentanen Gleichgewichtskonzentrationen der etwa 40 in der Stratosphäre wichtigen Moleküle mit einem nicht allzu kurzen Zeitschritt lösen zu können, werden untereinander sehr schnell reagierende Moleküle oft zu chemischen Familien längerer Lebensdauer zusammengefaßt (z.B. $\text{O}_x = \text{O} + \text{O}_3$, Familie des ungeraden Sauerstoffs). Eine Aufteilung in die einzelnen Familienmitgliedern erfolgt dann erst nach Berechnung der Gesamtkonzentration der Familie. Die für diese Berechnungen notwendigen Reaktionsraten und Absorptionsquerschnitte der etwa 150 in der Stratosphäre wichtigen Gasphasen-, Photolyse- und heterogenen Reaktionen basieren zumeist auf Labormessungen und sind z.B. in [DeMore, 1994] mit ihren oftmals großen Unsicherheiten tabelliert. Zur Bestimmung der Photolyseraten muß der Strahlungstransport durch die Atmosphäre bei gegebenem Sonnenzenitwinkel unter Berücksichtigung von Mehrfachstreuungseffekten berechnet werden (z.B. [Toon et al., 1989], [Blindauer et al., 1996]).

Aufgrund der hohen Anforderungen an die Rechenkapazität ist es derzeit nur bedingt möglich das System der photochemischen Reaktionen an existierende dreidimensionale Zirkulationsmodelle⁵ aus Klimaforschung und Meteorologie zu koppeln. Zur Untersuchung von Fragestellungen betreffend der vertikalen Verteilung der atmosphärischen Spurenstoffe behilft man sich daher oft mit **eindimensionalen Modellen**, bei denen der vertikale Transport mittels empirisch bestimmter Diffusionskoeffizienten charakterisiert wird. **Zweidimensionale chemische Zirkulationsmodelle** berechnen zonale Mittel der

⁵ GCM: General circulation model

Spurengaskonzentrationen auf einem Höhen-Breiten-Koordinatensystem, sodaß auch der mittlere meridionale Transport modelliert werden kann. Diese Modelle eignen sich u.a. zur Interpretation von Messungen globaler Abdeckung satellitengestützter Sensoren. Sie werden überdies ergänzend neben den jeweils vorhandenen Daten aus Satellitenmessungen zur Initialisierung von **dreidimensionalen chemischen Transportmodellen**⁶ verwendet. Letztere arbeiten auf einem Höhen-Breiten-Längen Gitter und liefern trotz ihrer recht groben Auflösung ein relativ anschauliches Bild der Zusammensetzung der Atmosphäre. Zur Simulation des dreidimensionalen Transports benötigen diese Modelle die aus allgemeinen Zirkulationsmodellen oder Analysen meteorologischer Meßdaten gewonnenen Winde. [Fabian] [Wayne] [Brasseur & Solomon].

⁶CTM: Chemical transport model

Kapitel 2

Passive Submillimeterwellen-Radiometrie

In der Atmosphärenfernerkundung werden in den verschiedenen Frequenzbereichen unterschiedliche Verfahren zur Bestimmung der Spurengaskonzentrationen eingesetzt.

Im ultravioletten, sichtbaren und nah-infraroten Spektralbereich spielen optische Techniken eine wichtige Rolle, bei denen die einfallende Strahlung in einer geeigneten Optik mittels dispersiver Elemente (z.B. Gitter) spektral aufgespalten und schließlich von Diodenarray- oder breitbandigeren Detektoren detektiert wird (siehe z.B. [Burrows et al., 1997], [Fleig et al., 1983]). Im mittleren bis fernen Infrarot sind z.B. Fabry-Perot und Michelson Interferometer von Bedeutung. Bei dem erstgenannten Verfahren wird ein spektral sensitives Element, der durchstimmbare Fabry-Perot Resonator, vor einem breitbandigen Detektor (Bolometer) betrieben [Pickett & Peterson, 1992]. Das Michelson-Prinzip beruht auf der breitbandigen Detektion zweier interferierender Teilstrahlen des ursprünglichen atmosphärischen Signals in Abhängigkeit eines Weglängenunterschieds zwischen den Teilstrahlen, welcher mittels eines fahrbaren Spiegels erreicht wird. Das resultierende Interferogramm muß durch eine Fouriertransformation in ein frequenz aufgelöstes Spektrum umgerechnet werden (z.B. [Fischer & Oelhaf, 1996]). Die bisher beschriebenen Techniken werden als *inkohärente* Verfahren bezeichnet, da nur die Leistung der Strahlung detektiert wird. Im Gegensatz hierzu wird bei den *kohärenten Heterodyn*-Verfahren, die in dieser Arbeit ausschließlich behandelt werden, das Signal unter Beibehaltung der Phaseninformation auf einen niedrigeren Frequenzbereich umgesetzt, so daß eine rauscharme Verstärkung, spektrale Filterung und Detektion des Signals mit konventionellen elektronischen Bauteilen möglich wird.

Heterodyn-Verfahren sind insbesondere für relativ schmalbandige, hochaufgelöste Messungen z.B. von Rotationsübergängen bei Millimeter- und Submillimeterwellenlängen den inkohärenten Verfahren überlegen. Eine hohe Auflösung ist hier insbesondere für die Bestimmung von Höhenprofilen aus den druckverbreiterten Spektrallinien wichtig. Im

oberen Submillimeterbereich ab einer Frequenz von etwa 2 THz werden die inkohärenten Verfahren aufgrund der mit steigender Frequenz abnehmenden Empfindlichkeit von Heterodynempfängern konkurrenzfähig¹ [Waters, 1993].

In diesem Kapitel sollen nun die Grundlagen der Submillimeterwellen-Radiometrie sowie der allgemeine Aufbau eines Heterodynempfängers erläutert werden.

2.1 Meßprinzip

Beim Heterodynempfänger wird das Atmosphärensignal der Frequenz ν_s mit dem hochstabilen Signal eines Festfrequenzoszillators bei ν_{lo} überlagert und von einem Mischer mit nichtlinearer Strom-Spannungs Charakteristik auf eine sogenannte Zwischenfrequenz ν_{if} umgesetzt, wobei die spektrale Information beibehalten wird. Für den Fall, daß die Leistung des sogenannten Lokaloszillators groß gegenüber der Signalleistung ist, ergeben sich (mit $\nu_{if} \ll \nu_{lo}$) folgende Mischprodukte [Kraus]:

$$(2.1) \quad \nu_{lo} + \nu_{if} = \nu_{s,usb} \quad \text{und} \quad \nu_{lo} - \nu_{if} = \nu_{s,lsb}$$

Mischprodukte höherer Frequenz (z.B. Summenfrequenz) werden nur mit geringerer Leistung umgesetzt und gegebenenfalls zusätzlich unterdrückt. Das Zwischenfrequenzsignal stammt also aus dem oberen (usb²) und unteren Seitenband (lsb³), oder anders ausgedrückt aus dem Signal- und Spiegelseitenband, mit der zu detektierenden Linie im Signalband. Werden beide Seitenbänder mit ungefähr gleicher Effizienz umgesetzt spricht man von einem *Doppelseitenband*⁴-Empfänger. Beim *Einseitenband*⁵-Empfänger wird das unerwünschte Seitenband durch ein (externes) Seitenbandfilter unterdrückt. Der Mischprozeß kann wiederholt werden, bis eine rauscharme Verstärkung und Detektion des Signals möglich wird.

Der prinzipielle Aufbau eines „Total-Power“-Empfängers ist in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt.

¹Die Eignung verschiedener Systeme für die satellitengestützten Messung einer Rotationslinie des Hydroxylradikals bei 2,52 THz zur Bestimmung der stratosphärischen Konzentration dieses Spurengases wird derzeit im Rahmen einer ESA-Studie [Piramyd, 1997] untersucht.

²usb: upper sideband

³lsb: lower sideband

⁴dsb: double sideband mode

⁵ssb: single sideband mode

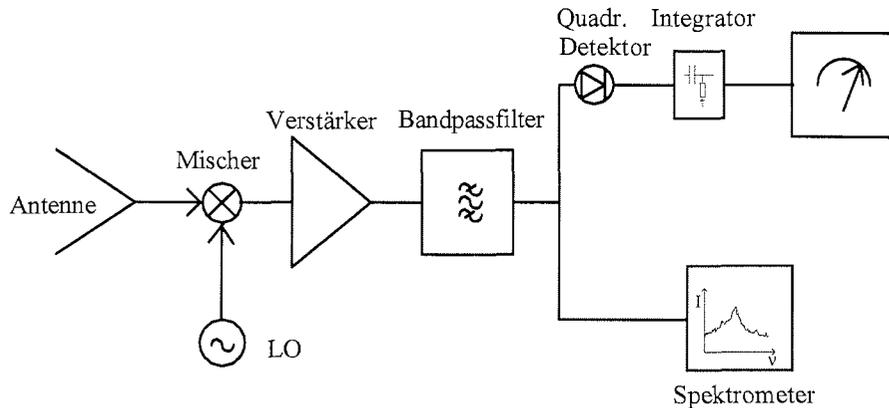


Abbildung 2.1: Prinzipieller Aufbau eines „Total-Power“-Empfängers (aus [Crewell, 1993]).

2.2 Meßgröße

Die pro Frequenzeinheit gemessene Größe setzt sich aus der spektralen thermischen Rauschleistung des Empfängers⁶ P_{rec} sowie der spektralen thermischen Rauschleistung am Empfängereingang P_{ant} , also z.B. dem Atmosphärensignal P_{ant}^{atm} , zusammen. Sie wird als spektrale Systemrauschleistung P_{sys} mit Einheit [W Hz^{-1}] bezeichnet:

$$(2.2) \quad P_{sys} = P_{ant} + P_{rec}$$

Durch Integration über das betrachtete Frequenzintervall ergibt sich hieraus die letztendlich am Detektor gemessene Leistung.

Der Zusammenhang zwischen der spektralen Strahlungsleistung der Atmosphäre P_{ant}^{atm} und der in Kapitel 1, Gleichung (1.10), definierten atmosphärischen Strahlungsintensität I_{atm} (in [$\text{W Hz}^{-1} \text{m}^{-2} \text{steradian}^{-1}$]) ist durch die Integration über den Raumwinkel Ω gegeben:

$$(2.3) \quad P_{ant}^{atm} = \frac{1}{2} A_e \int_{\Omega} I_{atm}(\theta, \phi) F_n(\theta, \phi) d\Omega$$

$F_n(\theta, \phi)$ ist eine normierte Antennencharakteristik und A_e die effektive Apertur (in [m^2])

⁶ thermisches Rauschen von Widerständen, Schrotrauschen in Halbleitern, Eigenemissionen der einzelnen Empfängerkomponenten.

der Antenne, welche mit dem Strahl-Raumwinkel

$$(2.4) \quad \Omega_A = \int_0^{4\pi} F_n(\theta, \phi) d\Omega$$

über das Antennentheorem

$$(2.5) \quad A_e \cdot \Omega_A = \lambda^2$$

in Beziehung steht. Da das Produkt aus Raumwinkel und effektiver Antennenapertur – die sogenannte *Étendue* – konstant ist, kann durch Vergrößerung des Raumwinkels prinzipiell keine Vergrößerung des von einer ausgedehnten Quelle empfangenen Signals erreicht werden. Der Faktor $1/2$ in Gleichung (2.3) ergibt sich, da eine lineare Antenne nur eine Polarisationsrichtung der normalerweise unpolarisierten thermischen Strahlung einkoppeln kann. θ und ϕ stehen für Zenit- und Azimutwinkel und sind gemäß $d\Omega = \sin\theta d\theta d\phi$ mit dem Raumwinkelement verknüpft. [*Kraus*] [*Vowinkel*].

2.3 Kalibration des Atmosphärensignals

Es ist prinzipiell nicht möglich bei der gemessenen Rauschleistung P_{sys} des Empfängers zwischen dem interessierenden Anteil aus der Atmosphäre und dem Empfängerrauschen zu unterscheiden. Das aus der Atmosphäre empfangene Gesamtsignal⁷ wird daher mit dem Signal zweier Kalibrationslasten⁸ unterschiedlicher, aber bekannter Planck'scher Strahlungsleistung verglichen. Die spektrale Strahlungsleistung des atmosphärischen Anteils P_{ant}^{atm} kann dann mittels linearer Interpolation zwischen den Kalibrationspunkten $(P_{sys}^{hot}, P_{ant}^{hot})$ und $(P_{sys}^{cold}, P_{ant}^{cold})$ aus dem gemessenen P_{sys}^{atm} bestimmt werden.

$$(2.6) \quad P_{ant}^{atm} = \frac{P_{ant}^{hot} - P_{ant}^{cold}}{P_{sys}^{hot} - P_{sys}^{cold}} (P_{sys}^{atm} - P_{sys}^{cold}) + P_{ant}^{cold}$$

Das auf diese Weise bestimmte Atmosphärensignal ergibt sich somit in der Einheit des bekannten Signals der Kalibrationslasten. Im Mikrowellenbereich wird die spektrale

⁷Die Systemrauschleistungen P_{sys} liegen in der Praxis als von den „Square-Law“ Detektoren gelieferte zur Leistung proportionale Spannungen oder digitalisiert als Zählraten vor.

⁸Absorbiermaterial z.B. bei Zimmertemperatur und bei der Temperatur flüssigen Stickstoffs (≈ 78 K).

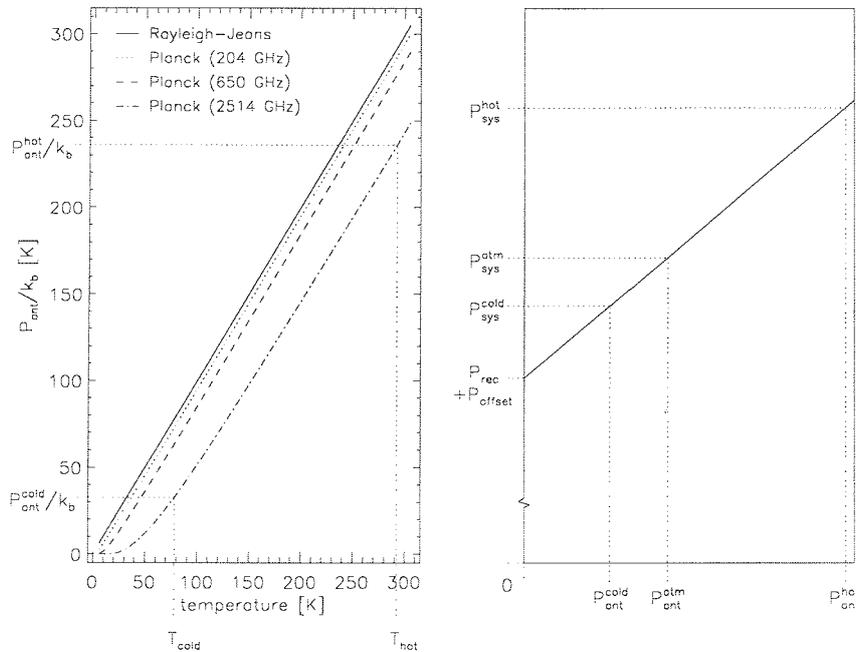


Abbildung 2.2: Links: Abweichung der Rayleigh-Jeans Näherung von der Planckfunktion in Abhängigkeit von der Temperatur für verschiedene Frequenzen des Submillimeterbereichs (siehe Legende). Rechts: Schema der Kalibration beim „Total-Power“-Empfänger.

Strahlungsleistung der Kalibrationslasten oft aufgrund der dort gültigen *Rayleigh-Jeans*-Näherung für die Planckfunktion

$$(2.7) \quad B(\nu, T) \approx 2k_B \frac{\nu^2}{c^2} T \quad (\text{wenn } h\nu \ll k_B T)$$

durch deren äquivalente Schwarzkörpertemperatur ausgedrückt, welche auch als *Helligkeitstemperatur* T_B des Schwarzkörpers bezeichnet wird. Im Submillimeterbereich ist diese Näherung, wie in Abbildung 2.2 dargestellt, insbesondere bei niedrigen Temperaturen nicht mehr gültig. Stattdessen kann die Helligkeitstemperatur als spektrale Leistung geteilt durch die Boltzmannkonstante unabhängig von der Gültigkeit der Rayleigh-Jeans Näherung definiert werden. Unter Verwendung von Gleichung (2.5) wird zudem ersichtlich,

daß dies der spektralen Leistung entspricht, die eine ideale beugungsbegrenzte Antenne empfangen würde:

$$(2.8) \quad T_B(\nu, T) \quad = \quad \frac{1}{k_B} P_{ant}$$

$$\quad \stackrel{(2.3)}{=} \quad \frac{1}{k_B} \frac{1}{2} A_e \int_0^{4\pi} B(\nu, T) F_n(\theta, \phi) d\Omega$$

$$\quad \stackrel{(2.5)}{=} \quad \frac{1}{k_B} \frac{1}{2} \frac{c^2}{\nu^2} B(\nu, T)$$

$B(\nu, T)$ ist hier die Planckfunktion aus Gleichung (1.13) in $[\text{WHz}^{-1}\text{m}^{-2}\text{steradian}^{-1}]$. Das kalibrierte Atmosphärensignal ergibt sich dann als Helligkeitstemperatur mit Einheit [K]. Aus Gleichung (2.8) kann desweiteren entnommen werden, daß die maximale spektrale Leistung, die in ein Heterodynsystem eingekoppelt werden kann, proportional zu $\frac{1}{2} \frac{c^2}{\nu^2} B(\nu, T)$ ist. Bei den Temperaturen der Atmosphäre fällt diese Funktion bei Frequenzen größer als 10 THz rasch ab, was praktisch eine Obergrenze für die Verwendbarkeit von Heterodynsystemen zur Messung thermischer Strahlung darstellt [Waters, 1993].

2.4 Systemempfindlichkeit

Die spektrale **Empfängerrauschleistung** P_{rec} ist ein Maß für die Summe aller Rauschquellen im Radiometer und hat einen direkten Einfluß auf die Grenzempfindlichkeit des Empfängers. Diese wird gewöhnlich mit der Y-Faktor Methode bestimmt, welcher als das Verhältnis zwischen den gemessenen Systemstrahlungsleistungen hinsichtlich der Eingangsleistungen zweier Kalibrationslasten unterschiedlicher Temperatur definiert ist. Aus Gleichung (2.2) kann dann die Empfängerrauschleistung ermittelt werden:

$$(2.9) \quad P_{rec} = \frac{P_{ant}^{hot} - y P_{ant}^{cold}}{y - 1} \quad \text{mit} \quad y = \frac{P_{sys}^{hot}}{P_{sys}^{cold}}$$

Die spektrale Empfängerrauschleistung P_{rec} setzt sich dabei wie folgt aus Beiträgen des Mischers P_{mixer} und der übrigen Zwischenfrequenzkomponenten P_{if} zusammen [Kraus]:

$$P_{rec} = P_{mixer} + L P_{if}$$

L beschreibt die Konversionsverluste am Mischer. Nur die ersten Bauteile des Empfängers tragen entscheidend zur Rauschleistung bei, da die Rauschbeiträge der einzelnen Komponenten der Kette mit den Konversionsverlustfaktoren der vorangegangenen Komponenten zu multiplizieren sind [Vowinkel].

Die **Grenzeempfindlichkeit** des Empfängers berechnet sich schließlich gemäß [Kraus] für eine gegebene Bandbreite $\Delta\nu$ und Integrationszeit τ mittels der *Radiometerformel*

$$(2.10) \quad \Delta P_{min} = \frac{\alpha P_{rec}}{\sqrt{\Delta\nu\tau + \left(\frac{\Delta G}{G}\right)^2}}$$

aus der Empfängerrauschleistung. Der Faktor α ist eine radiometerspezifische Konstante, die für den „Total-Power“-Empfänger gleich 1 ist. Das Verhältnis $\Delta G/G$ der Verstärkungsschwankungen zur mittleren Verstärkung innerhalb des betrachteten Zeitintervalls muß bei einem realen Empfänger zusätzlich zum rein statistischen Empfängerrauschen berücksichtigt werden [Vowinkel].

Wegen ihrer Proportionalität zur Temperatur im Gültigkeitsbereich der *Rayleigh-Jeans* Näherung wird die spektrale Systemrauschleistung zumeist als Systemrauschtemperatur ausgedrückt, wobei die Empfängerrauschtemperatur T_{rec} dann das Äquivalent zur Empfängerrauschleistung P_{rec} und die Antennentemperatur T_{ant} das Äquivalent zur eingekoppelten Strahlungsleistung am Empfängereingang P_{ant} darstellt. Die Rauschleistungen können auch hier wieder präziser durch die in Gleichung (2.8) definierten Helligkeitstemperaturen $T_B = P/k_B$ beschrieben werden. Diese Korrektur ist jedoch im allgemeinen klein im Vergleich zu den gemessenen Systemrauschtemperaturen und kann daher vernachlässigt werden.

2.5 Systemstabilität

Eine Bestimmung der maximalen Integrationszeit des Systems, bis zu der entsprechend der Radiometerformel (2.10) die statistischen Schwankungen abnehmen, bevor Driften und andere Instabilitäten zu einer Erhöhung des Rauschens beitragen, kann mittels der sogenannten *Allan-Varianz* Methode durchgeführt werden [Allan, 1966].

Hierzu wird eine Serie $x_{j=1..N}$ von N Messungen der (hinreichend kurzen) Integrationsdauer τ_{min} gebildet. Diese einzelnen Messungen werden zu Serien unterschiedlicher Integrationsdauer $\tau_k = k \tau_{min}$ zusammengefaßt:

$$x_{i,k} = \frac{1}{\tau_k} \sum_{j=ik-(k-1)}^{ik} x_j$$

$M = trunc(N/k)$ ist dann die Anzahl der mit der Integrationszeit τ_k gemittelten Meßwerte $x_{i,k}$. In Abhängigkeit von der Integrationszeit können nun die Varianzen der bei

einer radiometrischen Messung interessierenden Differenzen aufeinanderfolgender Einzelmessungen $\Delta x_{i,k} = x_{i,k} - x_{i-1,k}$ bestimmt werden, welche gemäß [Schieder, 1995] durch

$$(2.11) \quad \begin{aligned} \sigma_{\Delta x_{i,k}}^2 &= \langle \Delta x_{i,k}^2 \rangle - \langle \Delta x_{i,k} \rangle^2 \\ &= \frac{1}{M-1} \sum_{i=2}^M (\Delta x_{i,k})^2 - \left(\frac{1}{M-1} \sum_{i=2}^M \Delta x_{i,k} \right)^2 \end{aligned}$$

gegeben sind. Der zweite Term auf der rechten Seite der Gleichung ist im allgemeinen gleich Null, da sich positive und negative Differenzen im Mittel aufheben. Die in der Literatur etablierte *Allan-Varianz* unterscheidet sich in ihrer Definition lediglich durch einen Faktor 0.5 von diesem Ausdruck für die Varianz einer Differenzmessung ($\sigma_a = 0.5 \sigma_{\Delta x}$). Beim Heterodynempfänger sind die Meßwerte x durch die Systemrauschleistungen im interessierenden Frequenzintervall gegeben. Die gesuchte maximal sinnvolle Integrationszeit des Systems kann schließlich über das Minimum der *Allan-Varianz* bestimmt werden. Sind für eine Messung längere Integrationszeiten erforderlich, muß das System hinreichend oft kalibriert werden.

2.6 Empfängerkomponenten

Heterodynempfänger können in ihrem Aufbau recht verschieden sein, da je nach Frequenzbereich unterschiedliche Technologien zur Verfügung stehen. Diese sollen mit Blick auf den Submillimeterbereich nun kurz erläutert werden.

Aufgrund mit der Frequenz zunehmender Ohm'scher Verluste an den Leiterwänden der im Mikrowellenbereich gebräuchlichen metallischen Hohlleiter werden im Submillimeterbereich vorwiegend sogenannte **quasi-optische Techniken** zur Strahlführung eingesetzt. Hierbei wird von einer Wellenausbreitung von Strahlen gaußförmiger Intensitätsverteilung ausgegangen, da es das relativ kleine Verhältnis von Aperturgröße zur Wellenlänge nicht erlaubt, die Näherungen der geometrischen Optik zu benützen. Kennzeichen eines Gaußstrahls ist zudem das Vorhandensein einer Strahltaile. Je kleiner diese ist, desto stärker divergiert der Strahl. Mit zunehmender Frequenz nimmt diese Eigenschaft der Gaußstrahlen ab, sodaß im oberen Submillimeterbereich der Einsatz kompakterer Komponenten möglich ist. Fokussierende Elemente der quasi-optischen Strahlführung sind aufgrund ihrer geringen Verluste zumeist Parabol- oder elliptische Spiegel, während Gitter zur polarisationsabhängigen Strahlteilung eingesetzt werden. Desweiteren dienen Interferometer zur Filterung des Signals (Einseitenbandfilter) sowie zur Einkopplung des Lokaloszillatorsignals. Für eine grundlegende Darstellung der quasi-optischen Strahlführungstechnik und seiner Komponenten sei an dieser Stelle auf

[*Goldsmith*, 1992] verwiesen, eine anwendungsbezogene Untersuchung quasi-optischer Komponenten für den Submillimeterbereich bei 650 GHz ist in [*Crewell*, 1993] zu finden.

Die im Submillimeterbereich als Lokaloszillatoren häufig eingesetzten **Gunn-Oszillatoren** beruhen auf dem Effekt, daß bei Anlegen einer Spannung von einigen Volt an Blättchen bestimmter Halbleitermaterialien Schwingungen im Millimeterwellenbereich auftreten, aus denen dann durch den Einsatz von Vervielfachern Frequenzen von bis zu 1000 GHz erzeugt werden können. Diese zumeist aus Indium-Phosphit Halbleitermaterial bestehenden schmalbandig verstimmbaren Festkörperszillatoren zeichnen sich durch geringe Abmessungen und Stromverbrauch aus. Eine hohe Frequenzstabilität kann durch Nachregelung der Versorgungsspannung mittels einer sogenannten PLL⁹-Schaltung erzielt werden (siehe A.1).

Oberhalb 1000 GHz reichen die erzielbaren Leistungen der Gunn-Oszillatoren jedoch nicht mehr zum Pumpen der Mischer aus. Daher kommen hier optisch-gepumpte **Fern-Infrarotlaser** zum Einsatz, mit denen eine große Anzahl diskreter Moleküllinien ausreichender Leistung (≥ 1 mW) erzeugt werden kann. Aufgrund ihres Gewichts und der großen Leistungsaufnahme sind diese Oszillatoren jedoch für einige Anwendungen (Satellit) nicht oder nur bedingt geeignet. Zudem muß der Empfindlichkeit des Systems gegenüber Erschütterungen und Temperaturschwankungen Rechnung getragen werden [*Vowinkel*].

Als Mischer werden im Submillimeterbereich sowohl Schottky-Dioden als auch sogenannte SIS¹⁰-Mischer eingesetzt.

Schottky-Dioden-Mischer nutzen den Effekt einer nichtlinearen Strom-Spannungs Charakteristik an einem Metall-Halbleiter Übergang, welche durch das Auftreten einer spannungsabhängigen Potentialbarriere im Bereich der Halbleitergrenzschicht (zumeist Gallium-Arsenid) hervorgerufen wird. Die Signaleinkopplung kann durch quasi-optische und Hohlleitertechniken erfolgen. Für die quasi-optische Signaleinkopplung hat sich insbesondere die Langdrahtantenne mit 90°-Winkelreflektor („Corner-Cube“-Mischer) durchgesetzt. Mischerkonstruktionen in Hohlleitertechnik konnten erst in jüngster Zeit auch für den Einsatz im Terahertzbereich bei 2.5 THz entwickelt werden [*ASMOHR*, 1995], da aufgrund der mit höheren Frequenzen abnehmenden Dimensionen der Hohlleiter enorme technische Konstruktionsprobleme bestehen. Die erreichbaren Mischerrauschtemperaturen nehmen mit der Frequenz von ca. 200 K bei 142 GHz [*Klein*, 1993] über 2000 K bei 650 GHz [*Nett*, 1989] bis 15000 K bei 2.5 THz [*Titz et al.*, 1995 (a)] stark zu. Mit Ausnahme des Wertes bei 2.5 THz handelt es sich bei den hier beispielhaft aufgeführten Doppelseitenbandrauschtemperaturen um Werte für auf die Temperatur flüssigen Stickstoffs (78 K) gekühlte Mischer. Die benötigten

⁹ Phase-lock-loop

¹⁰ Superconductor-Insulator-Superconductor

Pumpleistungen der Schottky-Mischer liegen im Submillimeterbereich bei 0.1-1 mW. Für eine detaillierte Beschreibung des Schottky-Mischer Prinzips sei [Nett, 1989] empfohlen. **SIS-Mischer** weisen heutzutage im Frequenzbereich bis 1000 GHz weitaus niedrigere Mischerrauschtemperaturen auf als Schottky-Dioden-Mischer (siehe auch Kapitel 4). Die stark nichtlineare Strom-Spannungs-Charakteristik beruht hier auf dem photonenunterstützten Tunneleffekt von bei Anlegen einer äußeren Spannung aus Cooper-Paaren freigesetzten Elektronen durch die Isolationsschicht eines SIS-Übergangs. Ist die angelegte Spannung kleiner als die Energielücke zwischen Leitungs- und Valenzband, so kann die noch fehlende Energie durch Absorption von Photonen eines elektromagnetischen Strahlungsfeldes aufgebracht werden. Prinzipiell können SIS-Mischer nur bis zu Frequenzen, die in etwa der Energielücke entsprechen (bis ca. 1 THz) betrieben werden. Als supraleitendes Material werden z.B. Legierungen aus Blei, Wismut, Indium oder Niob verwendet. Die erforderlichen Pumpleistungen liegen im Submillimeterbereich nur bei einigen Mikrowatt, was die Anforderungen an den Lokaloszillator erheblich verringert. Ein Nachteil der SIS-Mischer-Technologie insbesondere hinsichtlich einer satellitengestützten Anwendung sind die für die Supraleitung erforderlichen niedrigen Betriebstemperaturen (≤ 10 K) und der damit verbundene kryotechnische Aufwand [Vowinkel] [Wengler, 1992].

Um das heruntergemischte Zwischenfrequenzsignal an die Mittenfrequenz, Bandbreite sowie den Eingangspegel der verwendeten Spektrometer anzupassen, ist eine hinreichende Verstärkung und Bandpaßfilterung sowie oft eine weitere Mischerstufe notwendig. An die **Zwischenfrequenzkomponenten** werden jedoch aufgrund der sukzessive abnehmenden Beiträge der Komponenten zur Empfängerrauschtemperatur und auch wegen der niedrigeren Frequenz relativ geringe Anforderungen gestellt. Bei den Verstärkern, Mixern, Bandpaßfiltern und Isolatoren handelt es sich somit im allgemeinen um handelsübliche elektronische Hochfrequenzbauteile. Lediglich der erste Verstärker trägt noch kritisch zur Empfängerrauschtemperatur bei. Im Gegensatz zu den sonst üblichen GaAs-FET¹¹-Verstärkern werden hierfür oft sogenannte HEMT¹²-Verstärker, die bei der Temperatur flüssigen Stickstoffs einen typischen Rauschbeitrag in der Größenordnung von etwa 30 K (bei 10 GHz) aufweisen, eingesetzt [Estec, 1992].

Verschiedene Spektromertypen sind für die spektrale Auflösung des Signals, d.h. die Umwandlung des breitbandigen, zeitabhängigen Zwischenfrequenzsignals in das Leistungsspektrum, geeignet.

Filterbankspektrometer decken das betrachtete Frequenzband durch eine Vielzahl von auf eine feste Mittenfrequenz abgestimmten Bandpaßfiltern ab, wobei die Bandbreite der Filter die Auflösung bestimmt. Das ZF-Signal wird durch Leistungsteiler auf die verschiedenen Filterkanäle aufgeteilt und muß ausreichend verstärkt werden, bevor es durch

¹¹ Feld-Effekt-Transistor

¹² High-Electron-Mobility-Transistor

Halbleiterdetektoren mit einer quadratischen Kennlinie detektiert werden kann. Filterbankspektrometer besitzen aufgrund der Vielzahl von Bauteilen pro Kanal ein relativ hohes Gewicht und eine große Leistungsaufnahme.

Beim **Akusto-Optischen Spektrometer** wird das Zwischenfrequenzsignal mittels eines piezoelektrischen Wandler in eine Schallwelle in einem optisch transparenten Kristall (z.B. Lithiumniobat LiNbO_3) umgewandelt, wodurch über die Dichteschwankungen im Kristall und die damit verbundenen periodischen Änderungen des Brechungsindex ein optisches Phasengitter entsteht. Bei Durchleuchtung des Kristalls mit monochromatischem Licht einer Laser-Diode senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der Schallwelle kann bei nachfolgender Fokussierung des erhaltenen Bragg'schen Beugungsmusters auf eine lineare CCD¹³-Detektorzeile das Leistungsspektrum in Form von Lichtintensitäten erhalten werden. Derzeit können mit dieser Technik Bandbreiten von etwa 1.5 GHz bei einer effektiven Auflösung um 1.5 MHz erzielt werden [Frerick, 1995] [Rosolen et al., 1994].

Das Prinzip eines **Chirp-Transform-Spektrometers** beruht auf der Bildung des Mischprodukts des zu analysierenden Eingangssignals mit einem frequenzabhängigen Impuls, dessen Frequenz linear mit der Zeit abfällt, dem sogenannten Chirp. Ein dispersives akustisches Oberflächenfilter verursacht dann eine frequenzabhängige Verzögerung, so daß die spektrale Leistung des Eingangssignals zeitlich aufgelöst vorliegt. Diese muß mit einem quadratischen Detektor abgetastet und digitalisiert werden. Chirp-Transform-Spektrometer erreichen derzeit maximale Bandbreiten von ca. 200 MHz bei Auflösungen von einigen hundert Kilohertz und sind deshalb insbesondere für schmalbandige, hochaufgelöste Messungen geeignet [Hartogh, 1989].

Vollständigkeitshalber soll an dieser Stelle noch der sogenannte **Autokorrelator** erwähnt werden, bei dem durch Bildung der Autokorrelationsfunktion der zeitabhängigen Signalspannung und nachfolgender Fouriertransformation das Leistungsspektrum erhalten wird. Aufgrund des Problems der erforderlichen hohen Abtastfrequenzen sind mit digitalen Autokorrelatoren bei den derzeitigen Rechnerleistungen Bandbreiten von bis zu 100 MHz bei einer Frequenzauflösung von ca. 50 KHz möglich [Vowinkel].

¹³Charge coupled device

Kapitel 3

Bestimmung von Spurengasprofilen aus druckverbreiterten Emissionslinien im Submillimeterwellenbereich

Fernerkundungssensoren nutzen die Kenntnis der Wechselwirkungsmechanismen der elektromagnetischer Strahlung mit dem atmosphärischen Gasgemisch zur Gewinnung von Information über den Zustand der Atmosphäre. Das Prinzip der Bestimmung der atmosphärischen Parameter – Mischungsverhältnisse der Spurengase, Druck und Temperatur – beruht auf dem Vergleich eines gemessenen Spektrums mit dem berechneten Spektrum eines Strahlungstransfermodells im entsprechenden Spektralbereich. Das Modell muß hierzu alle für die Entstehung des Spektrums relevanten physikalischen Prozesse hinreichend gut beschreiben. Je nach Spektralbereich sind unterschiedliche Prozesse in der Natur von Bedeutung. Im Millimeter- und Submillimeterwellenbereich sind dies insbesondere Emission, Absorption sowie die druck- und temperaturabhängigen Verbreiterungsmechanismen der Spektrallinien. Streuung an Molekülen hingegen, ein im ultravioletten und sichtbaren Bereich sehr wichtiger Effekt, kann vernachlässigt werden. Eine ausführliche Beschreibung des im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Strahlungstransfermodells für den Millimeter- und Submillimeterwellenbereich ist z.B. in [Urban, 1993] angegeben. Ergänzungen, insbesondere hinsichtlich der Behandlung der Kontinuummmissionen, sind in [Bühler *et al.*, 1996] zu finden. In diesem Kapitel soll dennoch ein kurzer Abriss über die für den Submillimeterwellenbereich relevanten physikalischen Prozesse nicht fehlen.

Ziel des Inversionsmodells ist es, durch eine optimale Wahl der Eingangsparameter des Strahlungstransfermodells eine möglichst gute Übereinstimmung des gemessenen mit dem modellierten Spektrum zu erzielen. Die Anpassung der Parameter kann z.B. mit Hilfe eines nichtlinearen Least-Squares-Verfahren erreicht werden. Aufgrund des oftmals begrenzten Informationsgehaltes einer Messung kann es jedoch notwendig sein, Zusatz-

informationen zur Stabilisierung des unter Umständen nur unterbestimmten Inversionsproblems bereitzustellen. Ausführliche Beschreibungen der für diese Arbeit wichtigen Inversionsverfahren sind z.B. in [Wehr, 1996] oder aktueller in [Wohlgemuth, 1997] zu finden. Daher soll in Abschnitt 3.2 nur in dem für das Verständnis dieser Arbeit notwendigen Ausmaß auf die verwendeten Verfahren eingegangen werden.

3.1 Modellierung atmosphärischer Emissionsstrahlung im Submillimeterwellenbereich

3.1.1 Strahlungstransfer im Submillimeterwellenbereich

Für die Berechnung des Strahlungstransfers in der Atmosphäre muß die in Kapitel 1 angegebene allgemeine Gleichung für den Strahlungstransfer (1.11) integriert werden (siehe z.B. [Goody & Yung]). Eine Beschränkung auf den Millimeter- und Submillimeterwellenbereich ermöglicht es ferner, Streuung an den Molekülen der Atmosphäre zu vernachlässigen, da diese klein im Vergleich zu den Wellenlängen sind. Die Quellfunktion $J_\nu(r, s)$ kann somit durch die Planckfunktion aus Gleichung (1.13) sowie der Extinktionskoeffizient durch den reinen Absorptionskoeffizienten ersetzt werden. Für eine nichtstreuende Atmosphäre im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht erhält man als integrale Form der Strahlungstransfergleichung im Submillimeterwellenbereich für einen Integrationsweg zwischen einem Startpunkt s_0 und einem Endpunkt s_s folgenden Ausdruck [Waters, 1976]:

$$(3.1) \quad I(\nu, s_s) = \int_{s_0}^{s_s} \underbrace{\alpha(\nu, s) \cdot B(\nu, T(s))}_{\text{Strahlungsintensität an Position } s} \cdot \underbrace{e^{-\tau(\nu, s, s_s)}}_{\text{Selbstabsorption der Atmosphäre aufgrund der dem Sensor näheren Schichten}} ds + \underbrace{I(\nu, s_0) \cdot e^{-\tau(\nu, s_0, s_s)}}_{\text{Hintergrundstrahlung, abgeschwächt durch die gesamte Atmosphäre}},$$

wobei $I(\nu, s_s)$ (in $[\text{W Hz}^{-1} \text{ m}^{-2} \text{ steradian}^{-1}]$) die Strahlungsintensität bei der Frequenz ν , $B(\nu, T(s))$ die Planckfunktion bei der Temperatur $T(s)$ mit gleicher Einheit, $\alpha(\nu, s)$ der Absorptionskoeffizient des Gasgemisches (in $[\text{m}^{-1}]$), und

$$(3.2) \quad \tau(\nu, s, s_s) = \int_s^{s_s} \alpha(\nu, s') ds'$$

die Opazität zwischen den Positionen s und s_s ist. Die *Transmission* der Atmosphäre zwischen diesen beiden Positionen ist durch $e^{-\tau(\nu, s, s_s)}$ gegeben.

Um bei Kenntnis der druck- und temperaturabhängigen Absorptionskoeffizienten eine Strahlungstransferrechnung durchzuführen, muß das Integral aus Gleichung (3.1) durch einen passenden numerischen Ausdruck ersetzt werden. Für die Diskretisierung wird die Atmosphäre in eine ausreichend große Anzahl sphärischer Schichten konstanter Temperatur, also konstanter Quellfunktionen, unterteilt. Die verbleibenden Integrationen innerhalb der einzelnen Schichten über die Absorptionkoeffizienten können bei Verwendung eines geeigneten Interpolationsverfahrens leicht durch numerische Simpson-Integration berechnet werden. Eine ausführliche Darstellung hierzu ist in [Urban, 1993] angegeben.

Es sei angemerkt, daß die Strahlungstransfergleichung in dieser einfachen Form nur für den Fall nach oben schauender oder den Rand der Atmosphäre abtastender Sensoren gültig ist. Instrumente hingegen, die in Nadir-Geometrie Messungen durchführen, empfangen zusätzlich Beiträge aus allen Richtungen, die von der Planetenoberfläche in Richtung Sensor reflektiert werden. Ferner kann im Submillimeterwellenbereich Streuung an Aerosolen, Eiskristallen oder auch den Wassertröpfchen der Wolken an Bedeutung gewinnen. Der Einfluß der Streuung an Cirruswolken im Submillimeterwellenbereich bei 642 GHz auf Limb-Sounder Messungen von Wasserdampf in der oberen Troposphäre wurde z.B. in [Bond, 1996] theoretisch untersucht. Cirren treten im Mittel nur bis in eine Höhe von ca. 3/4 der Tropopausenhöhe auf. Nur in äquatorialen Breiten wurde eine Einschränkung des Meßbereiches auf Höhen oberhalb 12 km festgestellt, da aufgrund der hohen äquatorialen Tropopause Wolken im allgemeinen auch im Höhenbereich zwischen 12 und 14 km auftreten. Die in der Stratosphäre bis in eine Höhe von ca. 30 km vorkommenden PSC's ($r \leq 10 \mu\text{m}$) und Sulfataerosole ($r \leq 0.5 \mu\text{m}$) sind von kleinerer Dimension¹ als die Eiskristalle der troposphärischen Cirren ($r \leq 1 \text{mm}$). Der Effekt von Streuung kann daher in der Stratosphäre als sehr klein angenommen werden und die Gültigkeit der Strahlungstransportgleichung in der hier verwendeten Form ist somit für den Bereich der Atmosphäre oberhalb der Tropopause gewährleistet.

3.1.2 Der Absorptionskoeffizient

In diesem Abschnitt sollen die in den Absorptionskoeffizienten einfließenden Größen in Anlehnung an die in [Urban, 1993] und [Bühler et al., 1996] angegebenen ausführlichen Beschreibungen zusammenfassend dargestellt werden.

Durch den Absorptionskoeffizienten wird die Wechselwirkung der elektromagnetischen Strahlung mit den Molekülen des atmosphärischen Gasgemisches beschrieben. Der Gesamtabsorptionskoeffizient für eine beliebige Frequenz ν ist durch die Summe über die Absorptionskoeffizienten aller Einzelübergänge der Moleküle des Gasgemisches gege-

¹ Die Wasser- oder Eisteilchen der atmosphärischen Wolken sind i.a. nicht rund, zudem ist die Größenverteilung der Teilchen sehr variabel. Die angegebenen Radien sollen hier nur eine Vorstellung über die ungefähren effektiven Dimensionen der Tröpfchen und Kristalle vermitteln. Eine zusammenfassende Klassifikation hinsichtlich der Form der Eiskristalle von Cirruswolken ist in [Bond, 1996] zu finden.

ben, da die Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Übergängen eines Moleküls i.a. vernachlässigbar sind:

$$(3.3) \quad \alpha(\nu, s) = \sum_{\text{Alle Übergänge}} \alpha(\nu, \nu_0, s)$$

Die Absorptionskoeffizienten der Einzelübergänge sind eine Funktion des Druckes und der Temperatur und proportional zur Teilchendichte N des absorbierenden oder emittierenden Gases:

$$(3.4) \quad \alpha(\nu, \nu_0, T, P, N) = N \cdot \sigma(\nu_0, T) \cdot S(\nu, \nu_0, P, T)$$

Auf die drei Größen auf der rechten Seite der Gleichung, Teilchenzahldichte N , Absorptionsquerschnitt σ und Linienformfaktor S soll nun etwas ausführlicher eingegangen werden.

Die **Teilchenzahldichten** N der absorbierenden bzw. emittierenden Moleküle können mittels der Zustandsgleichung für ein ideales Gas (1.3) durch Volumenmischungsverhältnisse (VMR) ausgedrückt werden, welche als das Verhältnis zwischen dem Partialdruck P_{partial} des Spurengases und dem Gesamtdruck P definiert sind:

$$(3.5) \quad N = \frac{n}{V} = \frac{P_{\text{partial}}}{k_b T} = \frac{VMR \cdot P}{k_b T} \quad \text{mit} \quad VMR = \frac{P_{\text{partial}}}{P}$$

n ist hier die Anzahl der Moleküle im Volumen V , k_b die Boltzmannkonstante.

Der druckunabhängige **Absorptionsquerschnitt** $\sigma(\nu_0, T)$ beschreibt die Linienstärke. Er ist für viele Übergänge und Moleküle bei einer festen Temperatur von $T=300$ K im JPL-Spektrallinienkatalog [Pickett et al., 1991] oder ähnlichen Datenbanken tabelliert. Er beschreibt die temperaturabhängigen spektroskopischen Eigenschaften eines Überganges und hängt von den quantenmechanischen Parametern des Moleküls, wie z.B. dem Dipolmoment, dem Übergangsmatrixelement (Übergangswahrscheinlichkeit) und der Differenz der Besetzungszahlen der am Übergang beteiligten Zustände, ab. Eine detaillierte Beschreibung auch hinsichtlich der notwendigen Umrechnung auf die tatsächlich in der Atmosphäre vorherrschenden Temperaturen ist wiederum in [Urban, 1993] zu finden.

Linienverbreiterung

Die druck- und temperaturabhängigen Verbreiterungsmechanismen der Spektrallinie sind durch die Funktion $S(\nu, \nu_0, P, T)$ für die Linienform gegeben. Diese auf eins normierte

Funktion² führt zu einer Verschmierung des Absorptionskoeffizienten über die Frequenz. Während die aufgrund der endlichen Wahrscheinlichkeit spontaner Emissionen auftretende *natürliche Linienbreite* vernachlässigbar klein ($\approx 10^{-6}$ Hz) ist, stellen Druck- und Dopplerverbreiterung die dominanten Effekte dar, welche die Form der Spektrallinien bestimmen.

Dopplerverbreiterung Die Geschwindigkeiten der Moleküle des atmosphärischen Gases sind durch die temperaturabhängige *Maxwell'sche* Geschwindigkeitsverteilung gegeben:

$$(3.6) \quad f(\mathbf{v}) = f(v_x)f(v_y)f(v_z) = \left(\frac{m}{2\pi k_b T}\right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{m}{2k_b T} \cdot v^2\right),$$

mit Molekülmasse m , Geschwindigkeit v und Temperatur T .

Aufgrund der Bewegungskomponente der Moleküle in Beobachtungsrichtung v_b tritt eine *Doppler-Frequenzverschiebung* ($\nu = \nu_0(1 + \frac{v_b}{c})$, mit c : Lichtgeschwindigkeit) auf. Eingesetzt in (3.6) und nach Normierung kann eine gaußförmige Funktion für die Dopplerradiationsform erhalten werden:

$$(3.7) \quad S_D(\nu, \nu_0, T) = \frac{1}{\Delta\nu_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \exp\left(-\ln 2 \cdot \left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_D}\right)^2\right)$$

mit der *Dopplerhalbwertsbreite* (HWHM)³

$$\Delta\nu_D = \frac{\nu_0}{c} \sqrt{2N_A \cdot kT \cdot \frac{\ln 2}{m}} = 1.1325 \cdot 10^{-8} \sqrt{\frac{T}{m}} \cdot \nu_0$$

Hierbei ist m die molare Masse in $[kg]$ und N_A die Avogadrozahl. Im Submillimeterwellenbereich wächst die Dopplerhalbwertsbreite linear mit der Frequenz von 100 KHz auf einige Megahertz an. Dieser Sachverhalt wird auch in Abbildung 3.1 verdeutlicht. Unterhalb von 100 km ist sie dabei nahezu konstant über die Höhe, da die Temperatur nur um einen Faktor von ca. 1.5 variiert [Künzi & Langen, 1991].

Druckverbreiterung Der atmosphärische Druck beeinflusst die Breite der Spektrallinien aufgrund der Wechselwirkungen zwischen den sich stoßenden Molekülen. Eine von der relativen Position der Moleküle abhängige potentielle Energie muß somit zusätzlich

² $\int S(\nu, \nu_0, P, T) d\nu = 1$

³ HWHM: Half width at half maximum.

berücksichtigt werden. Betrachtet man ein Molekül als einen harmonischen Oszillator, so würde ein Stoß mit einem anderen Molekül die Oszillation stören und die Amplitude, Phase, Orientierung oder den Impuls des Oszillators verändern. Unter Beachtung aller dieser Effekte leitete *Ben Reuven* eine sehr allgemeine Funktion für die Linienform her [*Waters*, 1976]. Mit der zusätzlichen Annahme, daß keine impulskehrenden Stöße auftreten und alle Phasenwechsel gleichwahrscheinlich sind, kann hieraus die Linienform von [*Van Vleck & Weisskopf*, 1945] erhalten werden. Hierbei ist die Druckbreite $\Delta\nu_C$ gemäß $\Delta\nu_C = 1/(2\pi t_c)$ mit der Stoßfrequenz verknüpft, t_c ist die mittlere Zeit zwischen zwei Stößen:

$$(3.8) \quad S_C(\nu, \nu_0, P, T) = \frac{1}{\pi} \left(\frac{\nu}{\nu_0} \right)^2 \left(\frac{\Delta\nu_C}{(\nu - \nu_0)^2 + \Delta\nu_C^2} + \frac{\Delta\nu_C}{(\nu + \nu_0)^2 + \Delta\nu_C^2} \right)$$

Im Millimeter- und Submillimeterwellenbereich kann die *Van Vleck & Weisskopf*-Linienform durch die *Lorentz*-Funktion approximiert werden⁴, welche die Fouriertransformierte eines harmonischen Oszillators bei einer Stoßwahrscheinlichkeit von $p = 1 - \exp\left(-\frac{\Delta t}{t_c}\right)$ innerhalb eines Zeitintervalls der Dauer Δt darstellt [*Fulde*, 1976]:

$$(3.9) \quad S_C(\nu, \nu_0, P, T) = \frac{1}{\pi} \left(\frac{\nu}{\nu_0} \right)^2 \frac{\Delta\nu_C}{(\nu - \nu_0)^2 + \Delta\nu_C^2}$$

Die Druckverbreiterung ist in der Submillimeterwellenregion bis hinauf in die Mesosphäre der dominierende Linienverbreiterungsmechanismus. Die Druckbreite fällt dabei mit der Höhe proportional zum Druck ausgehend von ca. $2.5 \cdot 10^3$ MHz in Bodenhöhe ab. Je nach Frequenz wird oberhalb einer bestimmten Höhe die Dopplerverbreiterung größer als die Druckverbreiterung, so daß dort nur weit außen an den Linienflügeln der Spektrallinien die wesentlich langsamer abnehmende Lorentzlinienform noch eine Rolle spielt.

Effektive Linienverbreiterung Abgesehen von der Abhängigkeit der Druckverbreiterung von der Relativgeschwindigkeit der Moleküle können Druck- und Dopplerverbreiterung als unabhängige Prozesse betrachtet werden. Das normierte Faltungsintegral der Doppler- und Lorentzfunktion führt dann auf die sogenannte *Voigt-Linienform*:

$$(3.10) \quad S_{Voigt}(\nu, \nu_0, P, T) = \frac{\Delta\nu_C}{\Delta\nu_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi^3}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-\ln 2 \left(\frac{\Delta\nu'}{\Delta\nu_D} \right)^2}}{(\Delta\nu - \Delta\nu')^2 + \Delta\nu_C^2} d(\Delta\nu')$$

mit $\Delta\nu = (\nu - \nu_0)$. Im Submillimeterwellenbereich ist diese Linienform in den Bereichen der Atmosphäre oberhalb von ca. 30 km bedeutend, wo das Verhältnis der Druckbreite zur

⁴Nur im „Far-wing“ Bereich gewinnt der zusätzliche Term der *Van Vleck & Weisskopf* Linienform an Bedeutung.

Dopplerbreite $\frac{\Delta\nu_C}{\Delta\nu_D}$ kleiner 30 ist [Fulde, 1976]. Für die praktische numerische Berechnung wird die Voigt-Linienform durch eine Approximation z.B. nach [Drayson, 1976] angenähert. Abbildung 3.1 veranschaulicht die Bedeutung der besprochenen Verbreitungsmechanismen im Submillimeterwellenbereich.

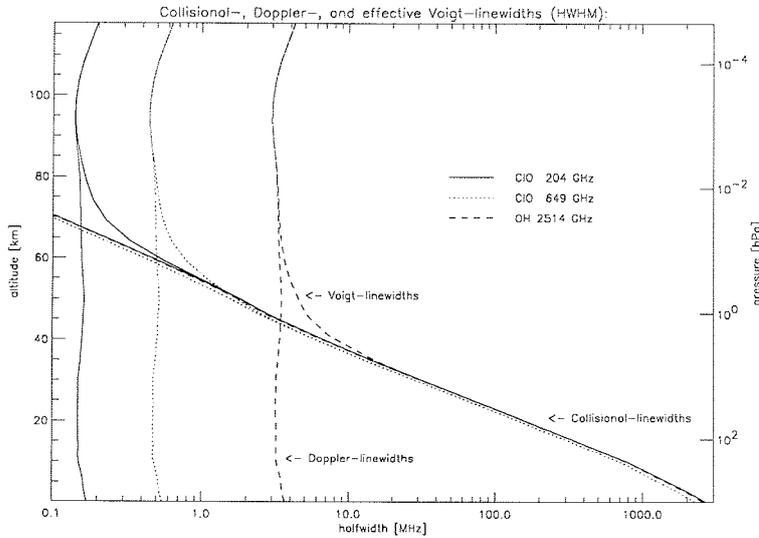


Abbildung 3.1: Änderung der Druck- und Dopplerlinienbreiten (HWHM) mit der Höhe in der Erdatmosphäre.

Die **Temperaturabhängigkeit der Druckverbreiterung** ist durch die Temperaturabhängigkeit der bei den Stößen wirkenden intermolekularen Kräfte bestimmt. Im Millimeter- und Submillimeterwellengebiet werden die Linien schon bei relativ kleinen Energien ($h\nu \ll kT$) und damit relativ großen Abständen zwischen den kollidierenden Molekülen gestört. Da demnach nicht die volle kinetische Energie ($= kT$) beim Stoß umgesetzt wird, kann der Linienverbreiterungsparameter nicht als unabhängig von der Temperatur angesehen werden. Eine intermolekulare Kraft, welche sich mit dem Abstand r gemäß r^{-n} ändert, verursacht hierbei eine Temperaturabhängigkeit der Linienbreite von $\Delta\nu_C \sim T^{\frac{-(n+1)}{2(n-1)}}$ [Fulde, 1976]. In der Praxis wird die Abhängigkeit der Halbwertsbreite einer druckverbreiterten Spektrallinie von Druck und Temperatur durch folgende Gleichung beschrieben:

$$(3.11) \quad \Delta\nu_C = \Delta\nu_C^0 \cdot \frac{P}{P_0} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{-x} \quad \text{mit} \quad x = \frac{n+1}{2(n-1)},$$

wobei $\Delta\nu_C^0$ der Wert von $\Delta\nu_C$ bei $T = T_0$ und $P = P_0$ ist. x ist ein Wert zwi-

schen ≈ 0.5 und 1.0 . Die Linienverbreiterungsparameter $\Delta\nu_C^0$ und die Koeffizienten der Temperaturabhängigkeit x müssen für jedes einzelne Molekül und jede Spektrallinie theoretisch oder durch Labormessungen bestimmt werden. Im allgemeinen ist es ausreichend bei der Bestimmung von $\Delta\nu_C^0$ und x nur Stöße mit den Hauptbestandteilen der Atmosphäre N_2 und O_2 zu betrachten. Näherungsweise gilt dann $\Delta\nu_C^0(N_2 + O_2) = 0.79 \cdot \Delta\nu_C^0(N_2) + 0.21 \cdot \Delta\nu_C^0(O_2)$ für in der Erdatmosphäre vorherrschende Drücke.

Kontinuum-Absorption

Neben dem reinen Linienspektrum müssen, wie schon in Kapitel 1.1.3 erwähnt, auch kontinuierliche nichtresonante Absorptionen bei der Berechnung des Absorptionskoeffizienten berücksichtigt werden. Ursache für diese zusätzlichen Absorptionen können z.B. die weit vom Linienzentrum nur sehr langsam abfallenden Flügel weit entfernter Spektrallinien sein. Ferner können stoßinduzierte nichtresonante Absorptionen auftreten, wenn während der Stöße mit anderen Molekülen die intermolekularen Potentiale und Wellenfunktionen gestört werden. Im Submillimeterwellenbereich sind insbesondere ein zur Konzentration des Wasserdampfes proportionales Wasserdampfkontinuum sowie eine nichtresonante Stickstoffabsorption von Bedeutung. Im folgenden sollen kurz die verschiedenen Kontinuumsbeiträge zum Gesamtabsorptionskoeffizienten erläutert werden.

Wasserdampfkontinuum Im Rahmen einer ESTEC-Studie [Bühler *et al.*, 1996] wurden zwei Modelle zur Beschreibung des Wasserdampfkontinuums im Submillimeterwellenbereich für geeignet befunden:

- Das sogenannte **Liebe-Modell**, welches als Standardmodell des Millimeterbereiches angesehen werden darf und in seiner neuesten Fassung [Liebe, 1993] bis zu einer Frequenz von 800 GHz validiert ist.
- Das Modell von Clough, Kneizys und Davies, kurz **CKD-Modell**, ein Standardmodell für die höheren Frequenzen des Infrarotbereichs [Clough *et al.*, 1989].

Liebe verwendet in seinem Modell die 34 stärksten Wasserdampflinien unterhalb 1000 GHz und benutzt zur Berechnung des Linienspektrums die Van Vleck & Weißkopf-Linienform (3.8), deren Temperaturabhängigkeit bereits mit Gleichung (3.11) beschrieben ist. Im Falle von hohen Wasserdampfpartialdrücken müssen allerdings auch H_2O - H_2O Stöße in Betracht gezogen werden, sodaß ein Korrekturterm hinsichtlich der Selbstverbreiterung notwendig wird. Liebe's Liniendatenbank [Liebe, 1993] umfaßt hierzu 6 Parameter für jede der Wasserdampflinien: zwei Parameter für die Linienstärke und deren Temperaturabhängigkeit, die vier anderen beschreiben die Druck- und Selbstverbrei-

terungshalbwertsbreite ($\Delta\nu_C^0$ bzw. $c_{H_2O} \cdot \Delta\nu_C^0$) sowie deren Temperaturabhängigkeiten (x_{dry} , x_{H_2O}). Gleichung (3.11) wird im Falle von Wasserdampf zu:

$$(3.12) \quad \Delta\nu_C = \Delta\nu_C^0 \cdot \left(\frac{P_{dry}}{P_0} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{-x_{dry}} + c_{H_2O} \cdot \frac{P_{H_2O}}{P_0} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{-x_{H_2O}} \right)$$

mit $T_0=300$ K und $P_0=1000$ hPa, $P_{dry} + P_{H_2O} = P$. Liebe benutzte zunächst einen einfachen empirischen Ansatz, um der zusätzlichen Kontinuumabsorption, die neben dem reinen Linienspektrum zu beobachten ist, Rechnung zu tragen. Da der Absorptionskoeffizient weit entfernt vom Linienzentrum ($|\nu - \nu_0| \gg \Delta\nu_C^0$) proportional zur Druckbreite ist, sollte seine Druck- und Temperaturabhängigkeit ähnlich Gleichung (3.12) sein. Ferner ist die einfachste mögliche Frequenzabhängigkeit die aus der Rayleigh -Jeans Näherung (2.7) für niedrige Frequenzen folgende ν^2 Abhängigkeit:

$$(3.13) \quad \alpha(\nu) = \nu^2 \cdot \left(C_{H_2O}^l P_{H_2O}^2 \left(\frac{T}{T_0} \right)^{-X_{H_2O}} + C_{dry}^l P_{dry} P_{H_2O} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{-X_{dry}} \right)$$

Die Bestimmung der Parameter ($C_{H_2O}^l=1.861 \cdot 10^{-8} \text{km}^{-1} \text{hPa}^{-2} \text{GHz}^{-2}$, $X_{H_2O}=10.5$, $C_{dry}^l=0.0608 \cdot 10^{-8} \text{km}^{-1} \text{hPa}^{-2} \text{GHz}^{-2}$ und $X_{dry}=4.5$, [Bühler *et al.*, 1996]) seines Modells erfolgt durch einen Fit an gemessene Totalabsorptionsdaten. Um die offenbar zu niedrigen Absorptionen bei Frequenzen oberhalb 500 GHz besser zu modellieren, dient in der neuesten Version des Liebe-Modells eine virtuelle Linie bei 1780 GHz zur Beschreibung der Linienspektren- und Kontinuumanteile aller Linien oberhalb 1000 GHz. Eine Extrapolation in diesen Bereich ist physikalisch somit nicht sinnvoll. Der Kontinuumanteil beim Liebe-Modell ist durch die Gesamtabsorption abzüglich dem Linienspektrum gegeben, hängt also von der Wahl dieser Linien ab.

Das **CKD-Modell** ist im Gegensatz zum Liebe Modell ein wirkliches, semiempirisches „Far-wing“-Modell, welches das Wasserdampfkontinuum ausschließlich durch die Anteile weit entfernter Linien beschreibt. Als Linienform wird eine generalisierte Van Vleck & Weißkopf-Linienform verwendet, mit der zunächst für alle Linien das Linienspektrum vom Kontinuumspektrum innerhalb einer Bandbreite von $\pm 25 \text{cm}^{-1}$ (≈ 750 GHz) um die jeweilige Linienmitte getrennt wird. Die Frequenzabhängigkeit des Kontinuumterms wird dann durch eine einmalige explizite Berechnung unter Berücksichtigung aller Wasserdampflinien erhalten, sodaß bei Verwendung des Modells nur hinsichtlich Druck und Temperatur extrapoliert werden muß. Weiterhin wird eine empirische Linienformkorrekturfunktion eingeführt, die es erlaubt, das resultierende Spektrum durch Variation des Kontinuumanteils an gemessene Daten frequenzabhängig anzupassen. Clough, Kneizys und Davies nehmen weiter an, daß die Druck- und Temperaturabhängigkeit gleich der des

einfachen empirischen Modells aus Gleichung (3.13) ist. Ihr Ergebnis sei an dieser Stelle in einer dem Liebe-Modell ähnlichen Parametrisierung angegeben [Bühler *et al.*, 1996]:

$$(3.14) \quad \alpha(\nu) = \nu^2 \cdot \left(C_{H_2O}^{ckd}(\nu, T) P_{H_2O}^2 \left(\frac{T}{T_0} \right)^{-3} + C_{dry}^{ckd}(\nu) P_{dry} P_{H_2O} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{-3} \right)$$

Die Koeffizienten resultieren letztlich aus einem Fit an die experimentellen Daten von [Burch, 1968]. Sie sind von [Clough *et al.*, 1989] bei nur zwei verschiedenen Temperaturen angegeben und müssen logarithmisch interpoliert werden, was eine Hauptschwäche des Modells darstellt [Bühler *et al.*, 1996].

Ein **Vergleich** beider Modelle mit experimentellen Daten ergibt jeweils eine gute Übereinstimmung im Millimeterwellenbereich. Im Bereich 300 GHz bis 800 GHz stimmt das Liebe-Modell gut mit den Daten von [Furashov *et al.*, 1989] überein, die für den Fit der Parameter verwendet wurden. Das CKD-Modell wurde in diesem Bereich an Daten von [Burch, 1968] angepaßt. Die Frequenzabhängigkeit des CKD-Modells ist hier größer als die des ν^2 -Terms der Liebe Formulierung. Beide Modelle stimmen mit atmosphärischen Messungen des ASUR Instruments bei 649.5 GHz innerhalb der Unsicherheiten der Messung überein ([Bühler *et al.*, 1996], im Anhang). Da das Liebe-Modell weniger rechenzeitaufwendig ist, soll es in diesem Frequenzbereich für die Strahlungstransferrechnungen eingesetzt werden. Oberhalb 1000 GHz jedoch verliert es seine Gültigkeit. Somit ist dort die Verwendung des CKD-Modells zwingend, selbst wenn hier keine experimentellen Vergleichsdaten vorliegen. Da das CKD-Modell unterhalb 1 THz sowie oberhalb 10 THz validiert und desweiteren konsistent mit der Theorie formuliert ist, stellt es die zur Zeit beste Approximation für den Submillimeterwellenbereich zwischen 1 und 3 THz dar. Der Fehler des Modells sollte nicht wesentlich größer als die für Parametrisierungen dieser Art üblichen 20 % sein [Bühler *et al.*, 1996].

Stickstoffkontinuum Moleküle wie N_2 (oder auch CO_2) besitzen keine permanenten Dipolmomente und aufgrunddessen kein Rotationsspektrum im Millimeter- und Submillimeterwellenbereich. Ihre elektrischen Quadropolmomente können jedoch während der Stöße untereinander Dipolmomente in den Partnermolekülen induzieren. Die Linienbreite der induzierten Resonanzen hängt nun von der Dauer der Stöße und nicht mehr von der mittleren Zeit zwischen den Stößen ab. Sie ist somit nicht von der Teilchenzahldichte des Gases abhängig und bewegt sich in der Größenordnung 300 GHz und mehr.

Die Anzahl der Zweierstöße pro Zeiteinheit ist gleich der halben Anzahl der Moleküle im betrachteten Volumen geteilt durch die mittlere freie Weglänge, welche wiederum umgekehrt proportional zur Teilchendichte der Moleküle ist. Die stoßinduzierte Absorption ist daher proportional zum Quadrat der Teilchendichte für gleiche Moleküle. Nimmt man die Frequenzabhängigkeit im Millimeterbereich wieder proportional ν^2 wie beim Was-

serdampf an, so gelangt man nach [Liebe, 1993] zu folgendem empirischen Ausdruck für die stoßinduzierte Stickstoffabsorption:

$$(3.15) \quad \alpha(\nu) = \nu^2 \cdot C_{N_2} P_{N_2}^2 \left(\frac{T}{T_0}\right)^{-X_{N_2}} \cdot \frac{1}{1 + 1.9 \cdot 10^{-5} \text{GHz}^{-1} \nu^{1.5}}$$

mit $C_{N_2} = 0.963 \cdot 10^{-13} \text{ km}^{-1} \text{ hPa}^{-2} \text{ GHz}^{-2}$, $X_{N_2} = 3.5$. Der zusätzliche frequenzabhängige Korrekturterm wird von [Liebe, 1993] eingeführt, um einer Überschätzung des N_2 -Kontinuums bei den höheren Frequenzen des Submillimeterwellenbereichs entgegenzuwirken.

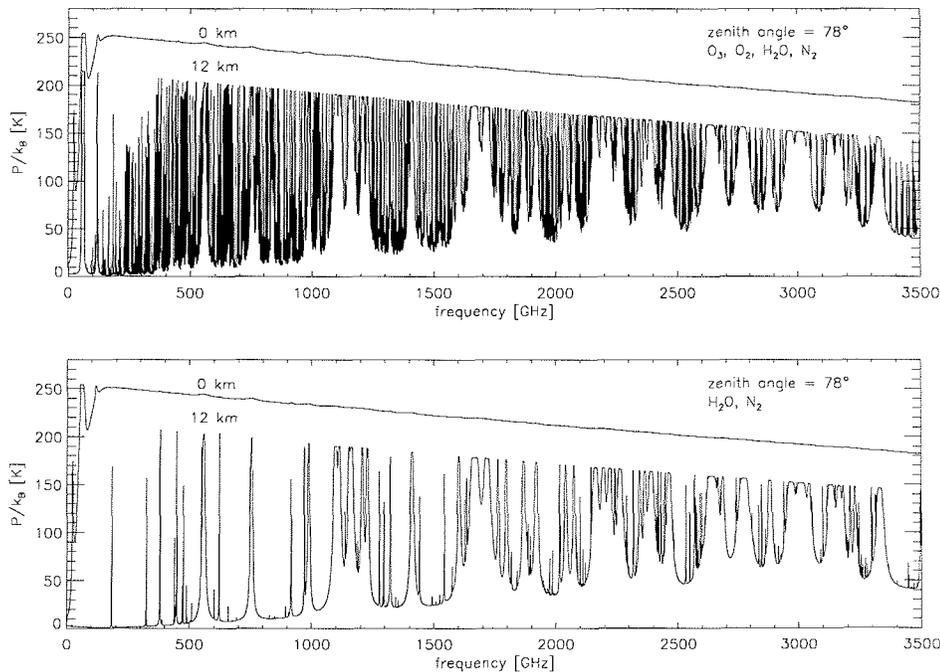


Abbildung 3.2: Oben: Modellrechnung für den Submillimeterwellenbereich für zwei verschiedene Höhen (0 km, 12 km) eines unter einem Zenitwinkel von 78° beobachtenden Sensors. Zusätzlich zum Linienspektrum der Moleküle O_3 , O_2 und H_2O ist das nichtresonante Kontinuum (CKD-Modell für H_2O + Liebe- N_2) berücksichtigt. Zum Vergleich ist in der unteren Grafik das Wasserdampf- und Stickstoffspektrum aufgetragen.

Im Submillimeterwellenbereich können entsprechend [Bühler *et al.*, 1996] die Anteile der nichtresonanten CO_2 -Absorption aufgrund der geringen CO_2 Konzentration gegen-

über der N_2 -Absorption vollständig vernachlässigt werden. Ferner spielt ein nichtresonantes O_2 -Kontinuum, welches als Teil eines Spin-Rotationsspektrums im Mikrowellenbereich auftritt, bei Frequenzen größer als 300 GHz in der Erdatmosphäre keine Rolle [Rosenkranz, 1993].

Abschließend sind in Abbildung 3.2 mit dem in diesem Abschnitt beschriebenen Modell durchgeführte Strahlungstransportrechnungen für den Submillimeterwellenbereich dargestellt. Die Rechnungen wurden für zwei verschiedene Höhen (0 km, 12 km) eines unter einem Zenitwinkel von 78° beobachtenden Sensors durchgeführt. Zusätzlich zum Linienspektrum der wichtigsten Moleküle O_3 , O_2 und H_2O wurde das nichtresonante Kontinuum (CKD-Modell für $H_2O + \text{Liebe-}N_2$) berücksichtigt. Im optisch dichten Fall (0 km) mißt der Sensor nur die spektrale Strahlungsleistung seiner unmittelbaren Umgebung, die Atmosphäre wird sozusagen zu einem Schwarzkörper bei Umgebungstemperatur und das Spektrum fällt wie die Planckfunktion entsprechend Gleichung (2.8) langsam mit der Frequenz ab. Um Messungen der Emissionslinien durchführen zu können, ist ein Submillimeterwellen-Sensor daher auf einen hochfliegenden Träger angewiesen. Die hohe Opazität der Troposphäre im Submillimeterwellenbereich ist dem dort hohen Wasserdampfgehalt zuzuordnen. In der unteren Grafik von Abbildung 3.2 ist zum Vergleich das reine Wasserdampf- und Stickstoffspektrum aufgetragen, wobei ersteres mit steigender Frequenz im Submillimeterwellenbereich zunimmt und somit Messungen bei höheren Frequenzen erschwert.

3.1.3 Validierung des Strahlungstransportmodells

Das zuvor beschriebene, am Institut für Umweltphysik der Universität Bremen entwickelte Strahlungstransportmodell wurde im Rahmen verschiedener Studien auf seine Funktionstüchtigkeit hin überprüft und nahm dabei erfolgreich an Vergleichen mit einer Vielzahl anderer Modelle teil.

- Hierbei ging es zum einen um die Validation des Modells bei gegebenen spektroskopischen Modellparametern, Mischungsverhältnissen der Spurengase sowie Druck- und Temperaturprofilen, d.h. um eine Überprüfung der Berechnung der Absorptionskoeffizienten in verschiedenen Spektralbereichen des Millimeter- und Submillimeterwellengebiets.
- Im zweiten Schritt erfolgte eine Validierung der Strahlungstransferrechnung bei vorgegebenen Absorptionskoeffizienten für verschiedene Beobachtungsgeometrien.

Für diese Arbeit sei insbesondere auf die neben anderen Linien im Submillimeterwellenbereich bis 1 THz durchgeführte Validierung des Modells anhand einer Ozonlinie bei

647.8 GHz hingewiesen [Dicken, 1995]. Für die Berechnung des Strahlungstransports wurde hierbei die Beobachtungsgeometrie eines satellitengestützten, den Rand der Atmosphäre abtastenden Sensors zugrundegelegt. Resultate der Validierung der Strahlungstransportrechnung für die Geometrie boden- oder flugzeuggestützter Empfänger sind in [Peter, 1994] zu finden.

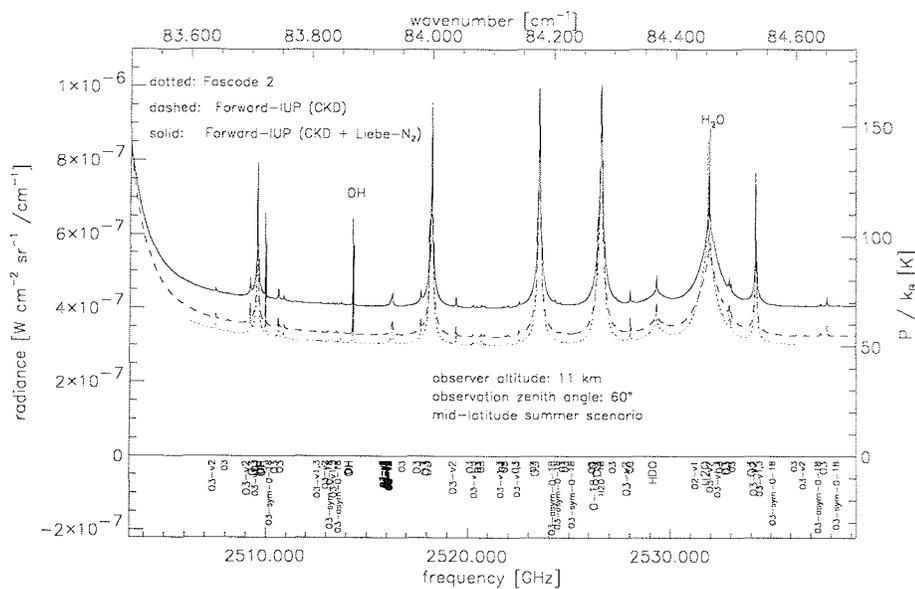


Abbildung 3.3: Vergleich des in dieser Arbeit verwendeten Strahlungstransfermodells mit einer Modellrechnung des „Line-by-Line“ Modells FASCODE-2 [Clough *et al.*, 1986] für den Frequenzbereich 2500-2540 GHz. Die Positionen der einzelnen Spektrallinien sind unterhalb des Spektrums bei Verwendung einer zur Linienstärke proportionalen Schriftgröße angedeutet.

Oberhalb 1 THz wurde im Rahmen dieser Arbeit ein einzelner Vergleich mit einem gängigen „Line-by-Line“ Modell (FASCODE-2, [Clough *et al.*, 1986]) bei einer Frequenz von 2.5 THz durchgeführt. Zugrundegelegt wurde dabei ein Szenario mit Standardprofilen für den Sommer in mittleren Breiten. Zudem wurde die Geometrie eines flugzeuggestützten Sensors bei 11 km Flughöhe bei einem Beobachtungszenitwinkel von 60° simuliert. Das Ergebnis beider Modelle ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Das IUP-Modell berechnet eine um etwa 5 K höhere „Baseline“ bei Verwendung des CKD-Modells für das Wasserdampfkontinuum. Die Parametrisierung von Liebe für die nichtresonante Stickstoffabsorption, welche allerdings in diesem Frequenzbereich von FASCODE 2 nicht berücksichtigt wird, verursacht einen zusätzlichen Beitrag von etwa 15 K.

3.2 Inversion der Strahlungstransfergleichung

Nachdem im vorherigen Kapitel das „Vorwärtsmodell“ für den Submillimeterwellenbereich skizziert wurde, erfolgt nun eine Darstellung des zur Bestimmung der atmosphärischen Parameter aus den druckverbreiterten Emissionslinien notwendigen „Inversionsmodells“.

3.2.1 Problemstellung

Das *Vorwärtsmodell* beschreibt den allgemeinen Zusammenhang zwischen meßbaren und nicht-meßbaren Größen (Daten und Modellparametern) und die damit verbundenen Unsicherheiten. Geht man davon aus, daß die Physik des Modells hinreichend gut bekannt ist, sind alle Unsicherheiten auf die in das Modell einfließenden Parameter zurückzuführen. Das Modell läßt sich dann ganz allgemein als Funktion der gesuchten Parameter x sowie der nur mit einer endlichen Genauigkeit bekannten Modellparameter \hat{b} , z.B. spektroskopische Parameter, Druck- und Temperaturprofile, darstellen:

$$\hat{y} = F(x, \hat{b})$$

Schätzwerte sollen dabei zur besseren Unterscheidung von „wahren“ Größen mit einem $\hat{}$ markiert werden. Im *Experiment* werden dann Informationen über die meßbaren Größen gesammelt:

$$y = F(x, b)$$

der Vektor y steht hier für die Messung, \hat{y} für das Modell, welches aus x und \hat{b} berechnet wird.

Das *Inversionsmodell* dient zur Bestimmung von Schätzwerten \hat{x} für die gesuchten Parameter x aus den mit einem Fehler ϵ_y gemessenen Größen y und den gegebenen Modellparametern \hat{b} :

$$(3.16) \quad \hat{x} = I(F(x, b) + \epsilon_y, \hat{b}, c)$$

Weiterhin kann man davon ausgehen, daß die gesuchten Parameter nicht völlig unbekannt sind, sondern schon gewisse Informationen über sie existieren. Viele Größen sind z.B. schon von ihrer Definition her positiv (absolute Temperatur, Konzentrationen). In der Atmosphärenfernerkundung kann diese „A priori“-Information z.B. klimatologischen

Atmosphärenmodellen entnommen werden. In Gleichung (3.16) wird diese nur im Inversionsmodell auftauchende zusätzliche Information durch ein c repräsentiert.

Das *Inversionsmodell* soll nun folgendes leisten:

1. Optimale Anpassung des gegebenen Vorwärtsmodells an die fehlerbehaftete Messung hinsichtlich eines noch zu definierenden, sinnvollen Anpassungskriteriums unter Berücksichtigung der schon über die zu bestimmenden Parameter vorhandenen „A priori“-Information.
2. Bestimmung des Fehlers der geschätzten Parameter \hat{x} aufgrund der Unsicherheiten der Messung y sowie der gegebenen Modellparameter \hat{b} .
3. Berücksichtigung von Nichtlinearitäten des Vorwärtsmodells (Strahlungstransfergleichung) durch ein geeignetes iteratives Verfahren.

3.2.2 Das Inversionmodell

Eine allgemeine Formulierung des inversen Problems als Grundlage für alle Inversionsverfahren, die „A priori“-Werte für die Stabilisierung des schlecht gestellten Problems verwenden, ist z.B. in [Wohlgemuth, 1997] zu finden. Von der Informationstheorie ausgehend wird dort das Wissen über die physikalischen Größen (Messung y , Parameter x , Modellparameter b) allgemein durch Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen charakterisiert, mithilfe derer jedem möglichen Wertebereich dieser Größen eine bestimmte Wahrscheinlichkeit zugeordnet werden kann.

Eine relativ einfache Form des inversen Problems läßt sich mit der Annahme, daß sowohl die Messgrößen, die Modellparameter des Vorwärtsmodelles, als auch die gesuchten und a priori in das Inversionsmodell einfließenden Parameter gaußverteilt sind, ableiten. Man erhält für die Wahrscheinlichkeitsdichte der Parameter folgenden Ausdruck:

$$(3.17) \quad \sigma(x) = \text{const} \cdot \exp\left(-\frac{1}{2} \cdot Z(x)\right)$$

mit

$$(3.18) \quad Z(x) = [y - F(x, \hat{b})]^t S_y^{-1} [y - F(x, \hat{b})] + [x - x_0]^t S_{x_0}^{-1} [x - x_0]$$

Dabei bedeutet $^{-1}$ die Inverse einer quadratischen, nicht-singulären Matrix sowie t die transponierte einer rechteckigen Matrix (hier eines Vektors). Die Zielfunktion $Z(x)$ besteht aus zwei Termen, die jeweils Summen aus Abstandsquadraten darstellen, wobei die

Kovarianzoperatoren S_y und S_{x_0} für die Kovarianzmatrizen der Messung y und des „A priori“-Vektors x_0 stehen. Sie bewirken somit eine Wichtung zwischen Messung und „A priori“-Information umgekehrt proportional zur Größe der Fehlerkovarianzen. Gehen die Parameter nur linear in das Vorwärtsmodell ein, so gilt $F(x, \hat{b}) = K(\hat{b}) \cdot x$. Die Suche nach dem Maximum der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion $\sigma(x)$ ist gleichbedeutend mit der Bestimmung des Minimums der Zielfunktion $Z(x)$. Diese Minimierung einer Summe von Abstandsquadraten als Kriterium für die Anpassung eines Modells an einen Datensatz wird im allgemeinen als „Least-Squares“ Verfahren bezeichnet. In der Fernerkundung ist das „Least-Squares“ Verfahren, welches zusätzlich wohlgewichtete „A priori“-Information über die Parameter berücksichtigt, als „Optimal-Estimation“ Methode (OEM) nach [Rodgers, 1976] bekannt. Das Optimal-Estimation Verfahren soll für die Inversionen der in dieser Arbeit dargestellten Messungen eingesetzt werden. Der interessierte Leser sei an dieser Stelle auf die Untersuchung weiterer Verfahren zur Bestimmung von Spurengasprofilen aus Submillimeterwellen-Emissionsspektren in den Arbeiten von [Wöhlgemuth, 1997] und [Wehr, 1996] hingewiesen, bei denen andere Annahmen über die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen (Minimierung der Abstandsbeiträge) sowie verschiedene Regularisierungsmethoden (Singularwertzerlegung, Tikhonov-Phillips-Regularisierung) zugrundegelegt wurden.

3.2.3 Die Optimal-Estimation Methode

Das Minimum der Zielfunktion $Z(x)$ aus Gleichung 3.18 kann algebraisch bestimmt werden (z.B. [Tarantola]). Im linearen Fall erhält man als optimalen Schätzwert \hat{x} im Sinne der OEM für den Vektor der wahren Parameter x den folgenden Ausdruck:

$$(3.19) \quad \hat{x} = \underbrace{[K^t S_y^{-1} K + S_{x_0}^{-1}]^{-1}}_{S_x} \cdot [K^t S_y^{-1} y + S_{x_0}^{-1} x_0]$$

wobei die Kovarianzmatrix für die Lösung durch S_x gegeben ist. Das Vorwärtsmodell \hat{y} wird hier durch die Matrix der Gewichtsfunktionen $K(\hat{b})$ repräsentiert.

Gehen die Parameter x nur schwach nichtlinear in das Vorwärtsmodell ein, so kann dieses um einen Entwicklungspunkt x_n linearisiert werden und man erhält bei Vernachlässigung höherer Ordnungen der Taylor-Reihe

$$(3.20) \quad \hat{y} \approx F(x_n, \hat{b}) + J_{x_n}(x - x_n)$$

mit den Komponenten der Jacobimatrix J_{x_n} gegeben durch die partiellen Ableitungen

des Vorwärtsmodells nach den Parametern am Linearisierungspunkt \mathbf{x}_n :

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

Die Jacobimatrix \mathbf{J}_{x_n} ist demnach eine Matrix „differentieller“ Gewichtsfunktionen, die im Gegensatz zu \mathbf{K} die Gewichtsfunktionen für die Änderungen $\Delta \hat{\mathbf{y}}$ des Vorwärtsmodells bei Variation der gesuchten Parameter \mathbf{x} enthält. Mit diesem einfachen Ansatz kann gemäß [Rodgers, 1976] ein iteratives Inversionsverfahren abgeleitet werden, welches anstelle der Absolutwerte der Parameter die Abweichung vom Linearisierungspunkt \mathbf{x}_n im Sinne der OEM schätzt. Dieses Verfahren wird in der Literatur auch als *Newton-Iteration* bezeichnet und die Gleichung für die iterative OEM lautet in Anlehnung an Gleichung (3.19):

$$(3.21) \quad \underbrace{\hat{\mathbf{x}}_{n+1} - \hat{\mathbf{x}}_n}_{\Delta \hat{\mathbf{x}}_n} = \underbrace{\left[\mathbf{J}_{x_n}^t \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{J}_{x_n} + \mathbf{S}_{x_0}^{-1} \right]^{-1}}_{\mathbf{S}_{\hat{\mathbf{x}}_n}} \cdot \left[\mathbf{J}_{x_n}^t \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y} - \hat{\mathbf{y}}_n) + \mathbf{S}_{x_0}^{-1} (\mathbf{x}_0 - \hat{\mathbf{x}}_n) \right]$$

\mathbf{J}_{x_n} stellt hier die für jede Iteration jeweils am Linearisierungspunkt \mathbf{x}_n berechnete Jacobimatrix der Ableitungen nach den Parametern dar, $\mathbf{S}_{\hat{\mathbf{x}}_n}$ ist die Kovarianzmatrix der Lösung der n -ten Iteration. Die Lösung der $(n+1)$ -ten Iteration ist durch $\hat{\mathbf{x}}_{n+1} = \hat{\mathbf{x}}_n + \Delta \hat{\mathbf{x}}_n$ gegeben. Startvektor für das iterative Verfahren kann z.B. der „A priori“-Vektor ($\hat{\mathbf{x}}_{n=0} = \mathbf{x}_0$) sein. Ein geeignetes Abbruchkriterium kann über die Änderung der Zielfunktion (3.18) (Unterschreiten eines bestimmten Wertes) definiert werden.

Als nächstes soll nun der Fehler der Lösung etwas genauer betrachtet werden.

3.2.4 Fehleranalyse

Man entwickle das Vorwärtsmodell $\hat{\mathbf{y}} = \mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b})$ linear um einen Referenzpunkt $(\mathbf{x}_n, \mathbf{b}_n)$ und erhalte

$$(3.22) \quad \hat{\mathbf{y}} - \hat{\mathbf{y}}_n = \underbrace{\left. \frac{\partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b})}{\partial \mathbf{x}} \right|_{\mathbf{x}_n, \mathbf{b}_n}}_{\mathbf{J}_{x_n}} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_n) + \underbrace{\left. \frac{\partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b})}{\partial \mathbf{b}} \right|_{\mathbf{x}_n, \mathbf{b}_n}}_{\mathbf{J}_{b_n}} (\mathbf{b} - \mathbf{b}_n) + \epsilon_y$$

mit dem Meßfehler ϵ_y . Die Modellparameter \mathbf{b} werden für die Fehleranalyse ganz analog wie die gesuchten Parameter \mathbf{x} behandelt. $\hat{\mathbf{y}}$ stellt somit das Vorwärtsmodell bezüglich der „wahren“ Parameter \mathbf{x} und \mathbf{b} dar und ist demzufolge das Äquivalent zu einer Messung \mathbf{y} . Man kann zeigen, daß Einsetzen von (3.22) in (3.21) und Subtraktion von $(\mathbf{x} - \mathbf{x}_n)$ auf

beiden Seiten der Gleichung zu folgendem Ausdruck für die interessierende Differenz zwischen dem geschätzten Vektor \hat{x}_{n+1} (der n-ten Iteration) und den „wahren“ Parametern x führt:

$$(3.23) \quad \hat{x}_{n+1} - x = \underset{\text{(I)}}{D_{y_n} \epsilon_y} + \underset{\text{(II)}}{(A_n - I)(x - x_0)} + \underset{\text{(III)}}{D_{y_n} J_{b_n}(b - b_0)}$$

Hierbei ist die *Beitragsfunktionenmatrix* D_{y_n} , deren Spalten für jeden Meßwert y_i den Beitrag zum Lösungsvektor \hat{x}_{n+1} beschreiben, für die n-te Iteration durch

$$(3.24) \quad D_{y_n} = \left(J_{x_n}^t S_y^{-1} J_{x_n} + S_{x_0}^{-1} \right)^{-1} J_{x_n}^t S_y^{-1}$$

gegeben. Der erste Term in Gleichung (3.23) steht für die Auswirkung des Meßfehlers ϵ_y auf das Inversionsergebnis. Die Fehlerkovarianzmatrix des Spektrums S_y liefert dann zur Kovarianzmatrix des Inversionsergebnisses den Beitrag:

$$(3.25) \quad S_{\hat{x}_n}^M = D_{y_n} S_y D_{y_n}^t$$

Diese Matrix wird als *Meßfehlerkovarianzmatrix* bezeichnet. Im zweiten Term wird die durch

$$(3.26) \quad A_n = D_{y_n} J_{x_n}$$

definierte *Auflösungsmatrix*⁵ eingeführt. Sie ist im allgemeinen ungleich der Einheitsmatrix I und beschreibt die Glättung der invertierten Parameter \hat{x}_n gegenüber den wahren Parametern x durch das Inversionsmodell. Die *Glättungsfehlerkovarianzmatrix* ist durch

$$(3.27) \quad S_{\hat{x}_n}^N = (A_n - I) S_{\hat{x}_n} (A_n - I)^t$$

gegeben [Rodgers, 1990]. Dieser Fehler wird im Englischen auch als „Null-Space Error“ bezeichnet, der den möglichen Schwankungsbereich der wahren Parameter x , die aufgrund der Glättung nicht vom Inversionsverfahren gesehen werden können, beschreibt. Die Summe beider zuvor benannter Fehlerkovarianzen ergibt den *totalen statistischen Fehler*, repräsentiert durch dessen Kovarianzmatrix $S_{\hat{x}_n}$.

⁵ Diese Matrix wird häufig (in Englisch) als „Averaging kernel matrix“ bezeichnet.

Betrachtet man in Gleichung (3.23) nur den zweiten Term und stellt etwas um, so gilt für den Vektor der geschätzten Parameter \hat{x}_{n+1} :

$$(3.28) \quad \hat{x}_{n+1} = A_n x + (I - A_n) x_0$$

Diese Darstellung von \hat{x}_{n+1} als Linearkombination von x und x_0 gewichtet mit A_n bzw. $(I - A_n)$ verdeutlicht die Möglichkeit einer Quantifizierung des Einflusses der Messung bzw. der a priori vorhandenen Information auf die Lösung durch die Auflösungsmatrix.

Der letzte Term in Gleichung (3.23) beschreibt die Auswirkungen der systematischen Fehler der Modellparameter b des Vorwärtsmodells, die durch die Kovarianzmatrix S_{b_n} spezifiziert werden, auf das Ergebnis. Die hieraus resultierende Fehlerkovarianzmatrix ist durch

$$(3.29) \quad S_{\hat{x}_n}^S = D_{y_n} J_{b_n} S_{b_n} D_{y_n}^t J_{b_n}^t$$

gegeben. Der Gesamtfehler der Inversion ergibt sich abschließend aus der Summe aller betrachteten Fehler.

Wenn auch die der OEM-Methode zugrundegelegten Annahmen über die statistische Natur der Parameter, Meßfehler und Modellparameter oft nur näherungsweise gegeben sind, so stellt die hier dargestellte ausführliche Fehlerbehandlung dennoch einen gewissen Vorteil der „Optimal-Estimation“ Methode gegenüber anderen Verfahren, welche auf der Annahme anderer, nicht-gauß'scher Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen basieren, dar.

In der Fernerkundung der Atmosphäre ist die Messung y im allgemeinen durch ein oder mehrere spektral aufgelöste, verrauschte Spektren gegeben. Die gesuchten Parameter x sind z.B. die Mischungsverhältnisse eines oder mehrerer Spurengase bei verschiedenen Höhenstützstellen. Ferner müssen häufig weitere unbekannte Parameter bestimmt werden, z.B. ein Spektrumoffset oder eine Unsicherheit in der Frequenz der Messung. Für alle Parameter kann die jeweils vorhandene „A priori“-Information gewichtet mit ihrer jeweiligen Unsicherheit eingebracht werden. Ergebnis der OEM ist dann eine Schätzung des Höhenprofils der Spurengase sowie weiterer (instrumenteller) Parameter. Die Fehler des ermittelten Höhenprofils kann in die zuvor besprochenen Anteile zerlegt werden. Aus der Auflösungsmatrix kann bei Verwendung eines geeigneten Kriteriums die Höhenauflösung des Spurengasprofils ermittelt werden. Ferner kann hieraus das Verhältnis zwischen dem Einfluß des „A priori“-Profils und dem der Messung auf das ermittelte Profil abgeschätzt werden.

Nachdem nun die Darstellung des Strahlungstransfermodells sowie des für die Bestimmung der atmosphärischen Parameter eingesetzten Inversionsverfahren abgeschlossen ist, kann in den folgenden Kapiteln eine Beschreibung der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen und deren Ergebnisse erfolgen.

Teil II

Kapitel 4

624-654 GHz:

Das SUMAS/ASUR-Instrument

Seit dem EASOE¹-Winter 1991/92 wird das SUMAS (**S**ubmillimeter **A**tmospheric **S**ounder) Experiment vom *Institut für Umweltphysik der Universität Bremen* auf dem Forschungsflugzeug FALCON der *Deutschen Forschungsanstalt für Luft und Raumfahrt (DLR)* eingesetzt, um chemische Prozesse in der Stratosphäre zu erkunden. Das SUMAS ist ein passiver Submillimeterwellen-Heterodynempfänger im Frequenzbereich 625-650 GHz, in dem zahlreiche gut meßbare Spektrallinien verschiedener für die Ozonchemie wichtiger Spurengase wie ClO, HCl, N₂O und Ozon zu finden sind [Crewell *et al.*, 1994] [Crewell *et al.*, 1995] [Wehr *et al.*, 1995].

Für die SESAME²-Kampagne 1994/1995 wurde die Empfindlichkeit des Empfänger-teils des Experiments in einer Zusammenarbeit mit *SRON³-Groningen* durch Verwendung eines mit flüssigem Helium gekühlten SIS⁴-Detektors anstelle der zuvor als Mischerelement verwendeten konventionellen Schottky-Diode grundlegend verbessert und zudem die Eignung dieser Technologie für den flugzeuggestützten Einsatz erstmals demonstriert [Mees *et al.*, 1995]. Mit den hierdurch erzielten um den Faktor 4-5 niedrigeren Einseitenband-Rauschtemperaturen von weniger als 1000 K konnte die notwendige Meßzeit für die einzelnen Moleküle um einen Faktor 16-25 verkürzt und somit die räumliche Auflösung des fortan SUMAS/ASUR (**A**irborne **S**ubmillimeter **S**IS **R**adiometer) genannten Instruments entlang der Flugbahn erheblich verbessert werden, so daß die Messung aller Moleküle während eines einzelnen Fluges möglich wurde. Durch den Einsatz eines breitbandigen, hochauflösenden Akusto-Optischen Spektrometers und einer Erweiterung des Spektralbereiches auf 624-632 GHz im unteren sowie 646-654 GHz im oberen Seitenband wurde zudem die Voraussetzung zur Detektion weiterer Moleküle mit zum Teil

¹ European Arctic Stratospheric Ozone Experiment

² Second European Stratospheric Arctic and Midlatitude Experiment

³ Space Research Organization of the Netherlands

⁴ Superconductor-Insulator-Superconductor

sehr schwachen Emissionslinien wie z.B. HO₂ oder BrO geschaffen. Hierdurch wurde auch die Messung einer zweiten, durch Überlappung anderer Linien weniger gestörten N₂O-Linie ermöglicht.

Meßflüge mit dem SUMAS/ASUR-Experiment wurden im Rahmen der europäischen SESAME-Kampagne im Frühjahr 1994 und 1995 (Phase I + III) sowie im Frühjahr der Jahre 1996 und 1997 durchgeführt (siehe Kapitel 6).

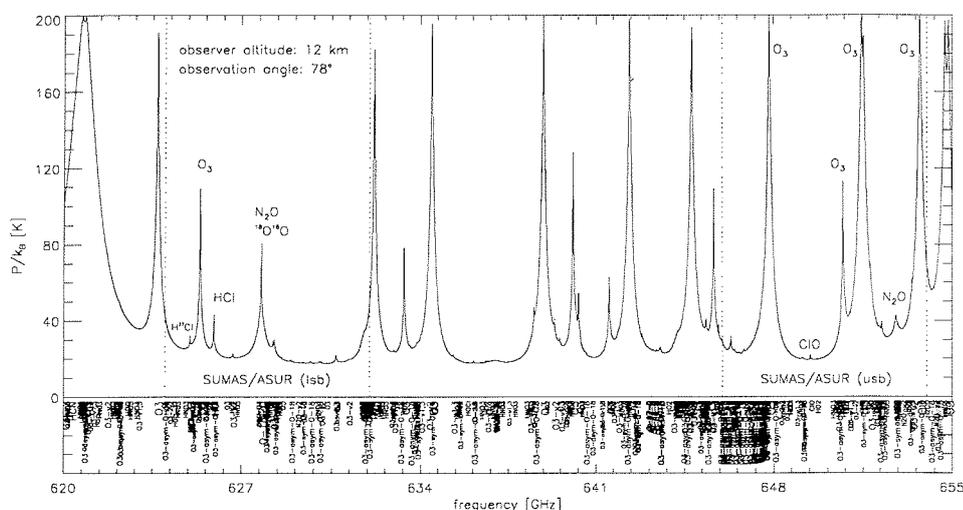


Abbildung 4.1: Modellrechnung für den SUMAS/ASUR-Spektralbereich zwischen 620 und 655 GHz für einen Beobachtungswinkel von 78° bei 12 km Flughöhe. Das Spektrum wird durch zahlreiche Ozonübergänge dominiert. Die Positionen der zahlreichen Spektrallinien in diesem Frequenzbereich sind unterhalb des Spektrums bei Verwendung einer zur Linienstärke proportionalen Schriftgröße angedeutet.

4.1 Aufbau des SUMAS/ASUR-Experiments

Das SUMAS/ASUR-Heterodyn-System stützt sich auf den Einsatz hochentwickelter SIS⁵-Dioden als Detektionselemente, welche mittels eines frequenzstabilisierten Festkörper-Lokaloszillators gepumpt werden. Ein geeigneter quasi-optischer Aufbau dient zur Einkopplung sowohl des Atmosphären- als auch des Lokaloszillatorsignales. Die gemessenen Emissionslinien werden mithilfe mehrerer Spektrometer, eines Filterbank-Spektrometers (FB), eines Akusto-Optischen Spektrometers (AOS) sowie eines Chirp-Transform Spektrometers (CTS) analysiert. Für die Experimentsteuerung und Datenauf-

⁵ Supraleiter-Isolator-Supraleiter

zeichnung dient ein VME-Bus Computer unter einem UNIX Betriebssystem. Bedingt durch die hohe Absorption des Wasserdampfes im Submillimeterwellenbereich werden atmosphärische Messungen von Bord des Forschungsflugzeugs FALCON der Deutschen Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt (DLR) bei einer Flughöhe oberhalb der Troposphäre von ca. 11 km durchgeführt. Die Meßgeometrie ist hierbei durch eine Beobachtung der Atmosphäre orthogonal zur Flugrichtung bei einem Zenitwinkel von 78° und einer asymptotischen Strahlaufweitung von 1.3° (FWHM)⁶ gegeben.

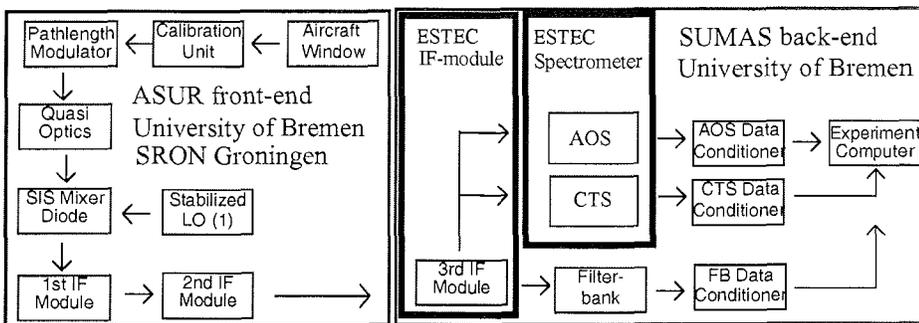


Abbildung 4.2: Aufbau des SUMAS/ASUR-Experiments mit ASUR-Frontend und SUMAS-Backend inklusive der verwendeten ESA/ESTEC-Spektrometer.

4.1.1 Der ASUR-Empfänger

Detektor SIS-Dioden bieten heutzutage eine weitaus höhere Empfindlichkeit und größere Bandbreite als andere nichtlineare Mischerelemente im Frequenzbereich bis 800 GHz.

Die für den ASUR SIS-Hohletermischer verwendeten Nb/Al₂O₃/Nb-Tunneldioden bestehen typischerweise aus einer Supraleiter-Isolator-Supraleiter Schichtung der Fläche $1 \mu\text{m}^2$ bei 1-2 nm Dicke der Barriere. Sie werden von SRON-Groningen mit einem speziellen Verfahren (SNOEP⁷, [Dierichs et al., 1993]) auf 2'' Quartz-Schichten hergestellt. Der Quartz-Chip mit dem SIS-Sandwich liegt quer über dem $100 \times 150 \mu\text{m}^2$ Hohleiter. SIS-Hohletermischer wurden von SRON zunächst für niedrigere Frequenzen und mit demzufolge größeren Abmessungen entwickelt, später jedoch aufgrund der Fortschritte in der feinmechanischen Herstellungstechnik auch in skalierten Version für 500 GHz und 750 GHz. Diese Mischer bestehen aus einem Block mit integriertem Horn und Einzelkurzschlußschieber⁸ und zeichnen sich durch eine gute, annähernd gaußförmige Strahl-

⁶ Full width at half power maximum

⁷ Selective niobium over etch process

⁸ Single-Backshort-Tuner

charakteristik aus. Eingebettet in ein „On-Chip“-Anpassungs- und Transformationsnetzwerk aus supraleitenden Niob-Microstrips kann die Diodenimpedanz an die Hohlleiterimpedanz mittels des Kurzschlußschiebers je nach Ausführung des Anpassungsnetzwerkes über den gesamten Frequenzbereich des Hohlleiters angepaßt werden. Der beim ASUR verwendete SIS-Hohlleitermischer kann daher in einem relativ breiten Bereich von etwa 610-760 GHz betrieben werden. Ein supraleitender Magnet aus Niob-Titan Draht sorgt zudem für eine Unterdrückung von Cooper-Paar-Tunnelströmen (Josephson-Strömen), welche bei SIS-Mischern im Submillimeterwellenbereich zusätzliche Rauschbeiträge liefern können [Wengler, 1992]. [Mees et al., 1994] [Mees et al., 1995].

Kryotechnik Die höhere Empfindlichkeit gegenüber konventionellen Schottky-Dioden kommt einher mit dem Nachteil der erforderlichen niedrigen Betriebstemperaturen von etwa 4.2 K (L^4He) und dem damit verbundenen kryotechnischen Aufwand. Aufgrund der Erschütterungen und Vibrationen, die während Start, Flug und Landung des Forschungsflugzeuges auftreten, ist für das ASUR-Kryosystem zudem eine hohe mechanische Stabilität gefordert. Auch muß die Standzeit des Dewars für die etwa 4-5 stündige Meßdauer ausreichen. Hierzu wurde von SRON-Groningen ein kommerziell erhältlicher 31-(L^4He)-Dewar mit einer 8" Grundplatte der Firma Infrared Physics (USA) als Basis für das ASUR-Kryosystem ausgewählt. Dieser Dewar enthält einen weiteren 31-Tank für flüssigen Stickstoff und zwei Strahlungsschilde bei 77 K und 4 K um den Wärmefluß in das Helium-Bad zu vermindern. Das Vakuumfenster des Dewars besteht aus Mylarfolie der Dicke 200 μm . Zusätzlich wird eine 110 μm dicke SiO_2 -Platte bei 77 K als Strahlungsschild im Signalweg verwendet. An der Rückseite des Dewars wird durch eine Öffnung die Mechanik für den Kurzschlußschieber des Hohlleitermischers nach außen geführt. Da die Empfindlichkeit des Detektors mit niedrigeren Temperaturen und somit geringeren Drücken des Heliumgases über der Flüssigkeit zunimmt, wird während der Messungen eine 2-stufige Membranpumpe eingesetzt, mit der ein Druck von 100-110 hPa entsprechend einer Temperatur des Heliumbades von etwa 2.5 K erreicht werden kann. Das Heliumgas wird über ein Dachventil des Forschungsflugzeuges nach außen abgepumpt. Um das Eindringen und Einfrieren von Wasser und Luft in der dünnen Röhre über dem Heliumtank bei steigendem Außendruck während der Landungsphase oder bei unerwartetem Ausfall der Pumpe zu verhindern, wurde ein Sicherheitssystem bestehend aus zwei parallel arbeitenden Überdruckventilen mit unterschiedlichen Öffnungsdrücken realisiert. Dieses System wurde von SRON-Groningen im Labor durch die Simulation plötzlicher Druckanstiege getestet. Dennoch kam es während der Meßkampagnen nach den Landungen vereinzelt zu Vereisungen der Heliumbadröhre und dem damit verbundenen Druckanstieg des verdampfenden Heliums im Tank. In allen Fällen konnte der in der Röhre festsitzende Eisklumpen jedoch problemlos manuell gelöst werden. Ursache für diese Vorfälle waren wahrscheinlich fehlerhafte Vakuum-Dichtungen oder Verbindungen [Mees et al., 1994]. Durch eine verbesserte Vakuumtechnik konnte dieses Problem 1997 schließlich befriedigend gelöst werden.

Lokalszillator Der den Frequenzbereich des Radiometers bestimmende Lokalszillator besteht aus einem im Frequenzbereich 106-107 GHz arbeitenden InP-Gunn-Oszillator mit nachfolgendem Schottky-Dioden-Verdoppler und -Verdreifacher. Mittels einer aktiven PLL⁹-Schaltung, welche die Frequenz des Gunnoszillators kontinuierlich mit der einer hochstabilen, bei niedrigerer Frequenz schwingenden Referenzquelle abgleicht, wird eine Frequenzstabilität von $\Delta\nu/\nu < 1 \cdot 10^{-7}$ erreicht. Durch Verstimmen des Gunn- und des Referenzoszillators kann eine Abstimmung des Lokalszillators etwa im Bereich 636-642 GHz erfolgen. Da ein SIS-Mischer im Gegensatz zum vormals verwendeten Schottky-Dioden-Mischer nur mit einer geringen Lokalszillatorleistung gepumpt wird, ist die Leistung des Lokalszillators relativ unkritisch und der tatsächliche Frequenzbereich des ASUR-Empfängers etwas größer. Für die Messung von Spektrallinien außerhalb dieses Bereiches muß zudem aufgrund der Breitbandigkeit des SIS-Mischers nur der Lokalszillator ausgetauscht werden, was 1994 mit der Messung einer ClO-Linie bei 686 GHz demonstriert wurde [de Valk et al., 1997].

Kalibration Ein durch einen computergesteuerten Schrittmotor drehbarer Spiegel wird für die periodische Einkopplung des Atmosphärensignals sowie der Strahlung zweier Eichlasten in den Empfängereingang verwendet. Die Temperaturen der beiden Eichlasten bestehend aus Absorbermaterial bei Raumtemperatur und bei der Temperatur flüssigen Stickstoffs werden mittels PT-100 Sensoren ständig überwacht. Während des Meßbetriebs werden Atmosphären- und Schwarzkörperstrahlung abwechselnd beobachtet. Nach jeder zweiten Atmosphärenbeobachtung steht somit jeweils eine Messung der sogenannten kalten oder warmen Last für die spätere Kalibration der Rohdaten zur Verfügung. Die Atmosphärenmessungen werden jeweils mit den benachbarten Referenzmessungen kalibriert, sodaß jede Referenzmessung zur Kalibration zweier Atmosphärenmessungen dient¹⁰. Da für die Integrationszeit pro Spiegelstellung beim ASUR-Instrument 2 s gewählt wurden, ergibt sich theoretisch alle 4 s, unter Berücksichtigung der in der Praxis auftretenden Totzeiten für Spiegelpositionierung und Spektrometerauslesen allerdings nur ca. alle 6-7 s eine kalibrierte Atmosphärentemperatur.

Für die Kalibration der relativ schwachen Spektrallinie von ClO wurde im Rahmen dieser Arbeit ein von [Crewell, 1993] entwickeltes glättendes Kalibrationsverfahren eingesetzt, welches zeitlich entfernte Referenzmessungen gewichtet mit einbezieht und Baseline-Effekte aufgrund von Verstärkerdriften unterdrückt.

Quasi-Optische Signaleinkopplung Die thermisch emittierte Atmosphärenstrahlung gelangt durch ein Fenster aus hochdichtem Polyethylen in das bedruckte Innere des Forschungsflugzeuges und wird dort mittels des drehbaren Spiegels der Kalibrationseinheit

⁹ Phase-lock-loop

¹⁰ Die Grenzempfindlichkeit des ASUR-Empfängers ergibt sich gemäß [Crewell, 1993] für dieses Kalibrationschema als die in Gleichung (2.10) angegebene Grenzempfindlichkeit eines „Total-Power“-Empfängers multipliziert mit dem Faktor $\sqrt{2}$.

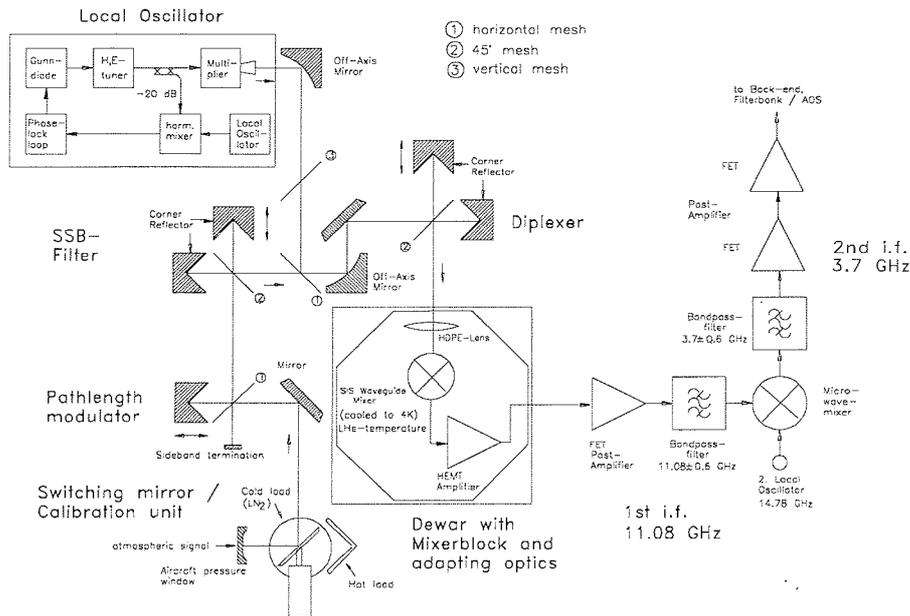


Abbildung 4.3: Blockdiagramm des ASUR-Empfängers mit Quasi-Optik und Zwischenfrequenzkette.

in den Empfängerzugang umgelenkt. Zur Unterdrückung von Fabry-Perot-Modulationen wird ein speziell optimiertes keilförmiges Transmissionsfenster verwendet, mit dem die Frequenzabhängigkeit der Leistungstransmission und -reflektion gegenüber einem planparallelen Fenster stark reduziert werden konnte [Crewell, 1993]. Die Dickendifferenz des Keils beträgt 1.56 mm auf 190 mm Breite des Fensters. Ein Weglängenmodulator ändert periodisch den Abstand zwischen Fenster und Detektor und dient somit zur Unterdrückung von Stehwellen, die durch Reflektionen in der Quasi-Optik entstehen können. Die beiden theoretisch von einem Heterodynsystem empfangenen Seitenbänder können mittels einem als Einseitenbandfilter betriebenen Martin-Puplett-Interferometer [Martin & Puplett, 1969] in ihren Polarisierungen getrennt werden. Während spektroskopischer Messungen wird das störende Spiegelseitenband vom Signalband getrennt und in einen Absorber bei Raumtemperatur geführt. Zur Strahlteilung werden Gitter, die aus 20 μm dickem Wolfram-Draht mit ungefähr 60 μm breiten Zwischenräumen bestehen, verwendet. Ein zweites Martin-Puplett-Interferometer wird als Diplexer benutzt, um Signal- und Lokaloszillatorstrahl bei gleichen Polarisationsrichtungen räumlich zu überlagern. Die Lokaloszillatorleistung kann zuvor mit Hilfe eines drehbaren Gitters auf den für den

SIS-Mischer optimalen Pegel abgeschwächt werden. Ein elliptischer Spiegel und eine zusätzliche Polyethylenlinse innerhalb des Dewars dienen zur Fokussierung des kombinierten Strahls durch das Mylarfenster des Dewars auf das Horn des SIS-Hohlleitmischer, wo das Signal auf eine Zwischenfrequenz umgesetzt wird. Ein zusätzliches Drahtgitter vor dem Mischerblock dient als Polarisationsfilter für den Kreuzpolarisationsanteil des Signals, der auf einen Absorber bei 4 K umgelenkt wird.

Zwischenfrequenzkette Der SIS-Mischer ist über ein kommerziell erhältliches Bauteil zur Einspeisung der Dioden Bias-Spannung¹¹ und einen Isolator mit dem ersten HEMT¹²-Verstärker der Zwischenfrequenzkette verbunden. Dieser erste Verstärker befindet sich ebenfalls innerhalb des Dewars und wird bei der Temperatur flüssigen Heliums betrieben. Das mittels eines „Semi-Rigid“-Hochfrequenzkabels aus dem Dewar herausgeführte heruntergemischte Signal wird weiter verstärkt und durch einen Bandpaßfilter auf eine Bandbreite von 11.08 ± 0.65 GHz beschränkt. Eine zweite Mischerstufe mit anschließender Verstärkung und Bandpaßfilterung sorgt schließlich für eine Umsetzung auf den Ausgangsfrequenzbereich des ASUR-Empfängerteils von 3.7 ± 0.65 GHz bei einer Ausgangsleistung von ca. 0 dBm. Die Gesamtverstärkung des ASUR-Empfängers beläuft sich insgesamt auf etwa 90 dB. Ein Blockdiagramm des ASUR-Empfängers ist in Abbildung 4.3 dargestellt.

Für die Meßkampagne im Frühjahr 1997 wurde die Bandbreite der ersten ZF auf 11.4 ± 2 GHz erweitert um ein schnelleres Umschalten zwischen den Spektrallinien von ClO, HCl, O₃ und N₂O durch Verstimmung eines anstelle des Festfrequenzoszillators als zweiten Lokaloszillator eingesetzten Synthesizers zu ermöglichen (siehe auch [Bremer, 1997]). Bis einschließlich 1996 mußte die Frequenzumschaltung durch eine Feinabstimmung des mechanisch relativ empfindlichen Gunnoszillators und der PLL erfolgen. Durch die Erweiterung der zweiten ZF auf eine Bandbreite von 3.7 ± 1 GHz wurde der Empfänger schließlich 1997 auch an die größte zur Verfügung stehende Spektrometerbandbreite angepaßt. Eine Auflistung der für die Messungen verwendeten Frequenzen ist in A.1 angegeben.

4.1.2 Das SUMAS-Backend: Spektralanalyse und Experimentsteuerung

Das heruntergemischte Zwischenfrequenzsignal am Empfängerausgang muß spektral aufgelöst, detektiert, integriert und schließlich gespeichert werden. Das SUMAS-Backend beherbergt die hierzu verwendeten Spektrometer sowie die Experimentsteuerung inklusive der Datenaufnahme (siehe Abbildung 4.2). Seit Januar 1995 werden zur Spektralanalyse

¹¹ „Bias-tee“

¹² High-Electron-Mobility-Transistor

lyse parallel drei verschiedene Spektrometertypen eingesetzt. Hierbei handelt es sich um zwei im Rahmen einer ESA/ESTEC¹³ „Limbsounder Breadboarding“ Studie entwickelte Spektrometer, ein Akusto-Optisches- und ein Chirp-Transform-Spektrometer, welche hinsichtlich ihrer Eingangsfrequenz, Bandbreite und Ausleseelektronik an das SUMAS-Backend angepaßt wurden. Zudem wurde am Institut für Umweltphysik der Uni Bremen – ebenfalls im Rahmen dieser Arbeit – speziell für das SUMAS-Backend ein Filterbank-spektrometer konstruiert und gebaut. Um das Ausgangssignal des ASUR-Empfänger-Frontends an die Mittenfrequenz, Bandbreite sowie den Eingangspegel der verschiedenen Spektrometer anzupassen ist mit Ausnahme des Filterbank-Spektrometers jeweils eine weitere Mischerstufe mit anschließender Verstärkung und Bandpaßfilterung notwendig. Ein Blockschaltbild dieses für die Adaption der verschiedenen Spektrometer entwickelten Zwischenfrequenzmoduls ist in Abbildung 4.4 dargestellt.

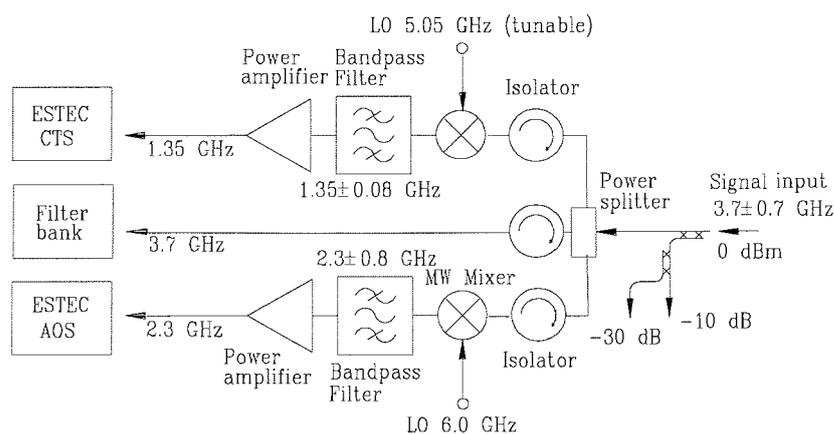


Abbildung 4.4: Blockschaltbild des Zwischenfrequenzmoduls zur Anpassung des Empfänger-Ausgangssignals an die Spektrometer des SUMAS-Backend.

Filterbank-Spektrometer Die im Rahmen dieser Arbeit am Institut für Umweltphysik entwickelte Filterbank mit 1.2 GHz Bandbreite besteht aus insgesamt 28 Kanälen, wobei zehn 8 MHz Kanäle in der Filterbankmitte von jeweils vier 40 MHz und fünf 80 MHz Kanälen an jeder Seite gefolgt werden. Hierdurch ist ein Kompromiß zwischen ausreichend hoher Auflösung in der Linienmitte und großer Bandbreite gewährleistet. Eine ausführliche Beschreibung des Filterbankdesigns ist in A.3 zu finden.

¹³ European Space Agency / European Space Technology Center

Akusto-Optisches-Spektrometer Ab der SESAME-Kampagne im Frühjahr 1995 wurde ein im Rahmen einer ESA/ESTEC „Limbsounder Breadboarding“ Studie vom Observatoire de Paris-Meudon neu entwickeltes breitbandiges Akusto-Optisches-Spektrometer [Rosolen *et al.*, 1994] für die SUMAS/ASUR-Messungen eingesetzt. Dieses Spektrometer deckt die volle Bandbreite des ASUR-Empfängers bei einer effektiven Auflösung besser als 1.5 MHz ab. Das Eingangssignal wird zunächst im AOS internen Zwischenfrequenzprozessor weiter verstärkt, um den für die Braggzelle notwendigen Pegel zu erreichen. Ein programmierbarer Abschwächer steht hierbei zur Anpassung der ZF-Eingangsleistung zur Verfügung. Ein Kammgenerator ermöglicht die Einspeisung eines definierten Signals zur Frequenzzeichnung des CCD-Detektors. Der Akusto-Optische-Prozessor des Spektrometers basiert auf einer LiNbO_3 -Braggzelle, einem leistungsstabilisierten Festkörper-Diodenlaser sowie einem linearen CCD-Detektor mit 1728 nutzbaren Kanälen der Breite 0.89 MHz. Eine aktive Temperaturstabilisierung erfolgt elektronisch geregelt für den Akusto-Optischen-Prozessor und die Laser-Diode. Das getaktete Auslesen der CCD-Pixel durch die AOS interne CCD-Elektronik-Einheit resultiert schließlich in einem Strom von analogen elektrischen Spannungen, dem sogenannten Video-Ausgangssignal des Spektrometers, welches zyklisch an einen externen Analog-Digital-Wandler übergeben wird.

Chirp-Transform-Spektrometer Zusätzlich zu den beiden breitbandigen Spektrometern wurde 1995 und 1996 ein ebenfalls im Rahmen der ESA/ESTEC-Studie von der Deutschen Aerospace (DASA) entwickeltes Chirp-Transform-Spektrometer mit einer hohen Auflösung von 0.278 MHz und einer schmaleren Bandbreite von 180 MHz eingesetzt. Durch den Einsatz eines verstimmbaren Synthesizers als Lokalszillator der letzten Zwischenfrequenz-Mischerstufe (siehe 4.4) konnte dieses Spektrometer innerhalb des SUMAS/ASUR-Bandpasses auch auf eine Spektrallinie außerhalb der Bandpaßmitte abgestimmt werden und war somit eine sinnvolle Ergänzung zum nur in der Mitte gut auflösenden Filterbank-Spektrometer. Trotz der im allgemeinen sehr guten Übereinstimmung mit den beiden anderen Spektrometern wurden die Daten des CTS im Rahmen dieser Arbeit aufgrund der geringeren Bandbreite nicht für die Bestimmung von Spurengasprofilen verwendet. Das CTS sei daher an dieser Stelle nur der Vollständigkeit halber erwähnt.

Computer System Die Experimentsteuerung und das periodische Auslesen der Spektrometer wird von einem VME-Bus-Computer unter einem Unix-Betriebssystem durchgeführt. Ein PC dient als System-Konsole für die Programmierung und als „Quick-look“-Terminal während der Messungen. Aktuelle Flugdaten wie z.B. Flughöhe, geographische Position, Außentemperatur und Rollwinkel werden permanent vom Bordcomputer des Forschungsflugzeuges FALCON abgefragt und mit den spektralen Daten sowie zusätzlichen „Housekeeping“-Daten des Experiments auf Magnetband aufgezeichnet. Die Rollwinkeldaten werden während der Messung für die Berechnung des Meßzenitwin-

	ESTEC-AOS	ESTEC-CTS	IUP-Filterbank
Readout channels	1728 (1754 total)	638 (640 total)	28
Center frequency	2332.478 MHz (ch. 864)	1350.0 MHz	3700.0 MHz
Usable bandwidth	1532.4 MHz (ch. 17-1744)	178 MHz (ch. 3-640)	1200 MHz
Bandwidth (-3 dB)	1400 MHz (1650-3050 MHz)	–	1200 MHz
Passband ripple	3 dB	< ± 1 dB	< 3 dB
Resolution (-3 dB)	1.26 MHz	0.278 MHz	8/40/80 MHz
Frequency linearity	< ± 1 MHz (after cubic fit)	< 5%	–
Input noise level	-10 – -30 dBm	-10 – -25 dBm	-4 – -14 dBm
Lin. dynamic range	20 dB	15 dB	10 dB
Amplitude linearity	< 1%	< 1%	$\leq 2\%$
Allan variance	100 s	> 180 s	–
Integration time	typically 20 ms	min. 500 ms	–
Output	analog sampled video	parallel 16 bit	28 analog ch.
Readout data rate	9 μ s/pixel (110 kHz)	≤ 1 MHz (ext. clocked)	–
Temp. stabilization	± 1 °C (10-30 °C)	–	–
Comb generator	100 MHz spacing	–	–
Input attenuator	0-15 dB (1 dB steps)	–	–

Tabelle 4.1: Spezifikationen der im SUMAS-Backend eingesetzten Spektrometer im Vergleich gemäß [Rosolen et al., 1994] (AOS), [DASA, 1994] (CTS) sowie eigenen Messungen bezüglich der IUP-Filterbank.

kels berücksichtigt. Zur Ansteuerung und Auslesung der Spektrometer werden geeignete VME-Bus Preprozessorkarten verwendet, die auch eine Vorintegration der Spektrometerdaten bereits während der Messung erlauben.

4.1.3 Einbau in das Forschungsflugzeug

Das SUMAS/ASUR-Experiment teilt sich auf drei von der DLR-Flugabteilung in Oberpfaffenhofen bereitgestellte Standard-Flugzeugracks auf, dem sogenannten Frontend-Rack mit dem ASUR-Empfänger, dem Backend-Rack mit Experiment-Computersystem und Filterbank-Spektrometer, sowie dem Utility-Rack, in dem die beiden anderen Spektrometer sowie Geräte für Systemoptimierung und Tests untergebracht sind. Jedes Rack wiegt komplett bestückt etwa 100 kg. Der Einbauplan in die FALCON ist in Abbildung 4.5 dargestellt.

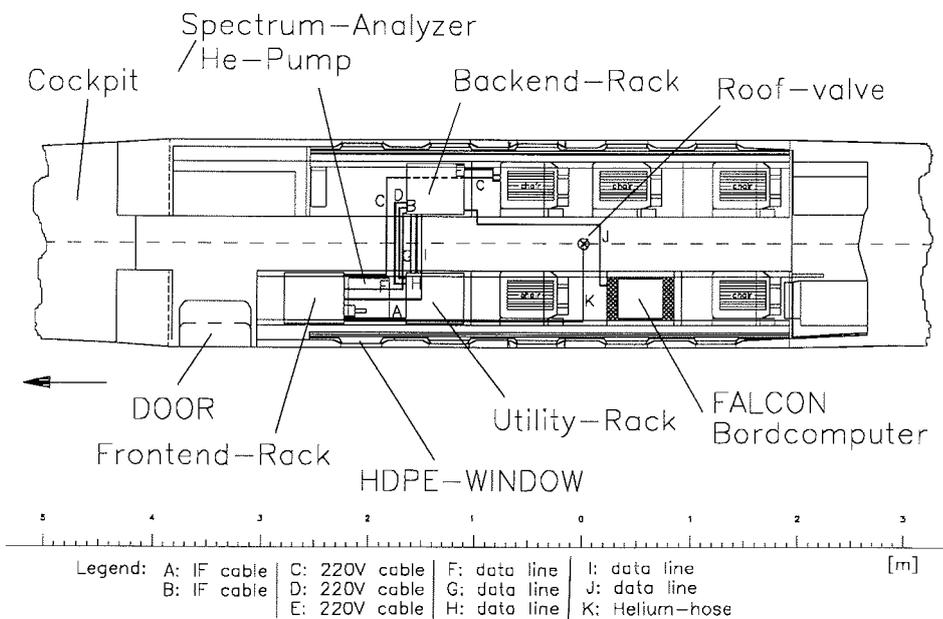


Abbildung 4.5: Einbauplan des SUMAS/ASUR-Experiments in die FALCON. Das hier noch dargestellte Rack für die Bordmeßanlage der FALCON wurde nach der Meßkampagne im Frühjahr 1995 durch eine kleinere Einheit ersetzt.

4.2 Kalibrations- und Systemmessungen

Für die Gewährleistung einer einwandfreien Funktion des SUMAS/ASUR-Systems während der Meßflüge wurden jeweils im Vorfeld der Kampagnen eine Reihe von Systemtests und Kalibrationsmessungen durchgeführt. Hierzu zählen insbesondere

- eine Justage der quasi-optischen Komponenten,
- die Kalibration des Seitenbandfilters,
- eine Optimierung der Stehwellenunterdrückung,
- Allan-Varianz Stabilitätsmessungen für das Gesamtsystem.

Für die **Justage der quasi-optischen Komponenten** werden zunächst die Gitter der Martin-Puplett-Interferometer durch Folien ersetzt um mittels des sichtbaren Strahls ei-

nes in den Empfängereingang eingespeisten Helium-Neon-Lasers eine geometrische Vorjustierung durchzuführen. Anschließend kann eine Optimierung der Strahlführung z.B. durch die Einspeisung eines externen Submillimeterwellensignals oder durch Optimierung des Y-Faktors erreicht werden. Ein externes Signal wird z.B. durch eine höhere Harmonische eines durch einen Synthesizer bei Frequenzen um ca. 10 GHz angesteuerten Schottky-Dioden Mischers realisiert. Für die Y-Faktor Optimierung wird in der Praxis das Signal der kalten Kalibrationslast mittels eines Choppers periodisch moduliert und die Differenz der entsprechenden durch einen schnellen Detektor gleichgerichteten Zwischenfrequenzsignale durch einen Lock-In Verstärker verstärkt und angezeigt. Für eine ausführlichere Beschreibung sei auf [Mellmann, 1996] verwiesen.

Nach erfolgter Justage der Optik müssen für jede spätere Meßfrequenz die optimalen Einstellungen des als **Einseitenbandfilter** betriebenen Martin-Puplett-Interferometers bestimmt und vermessen werden. Hierzu wird wieder am Empfängereingang ein externes Signal eingespeist und zunächst mithilfe eines ZF-Spektrumanalysators die optimale Weglängendifferenz für maximale Transmission des Signalbandes bei größtmöglicher Unterdrückung des Spiegelbandes bestimmt. Anschließend kann durch Verstimmen des die Schottky-Diode ansteuernden Synthesizers eine frequenzabhängige Messung über die Bandbreite der späteren Messung vorgenommen werden. Diese Methode ist z.B. in [Crewell & Nett, 1992], [Crewell, 1993] oder [Mellmann, 1996] ausführlich dargestellt.

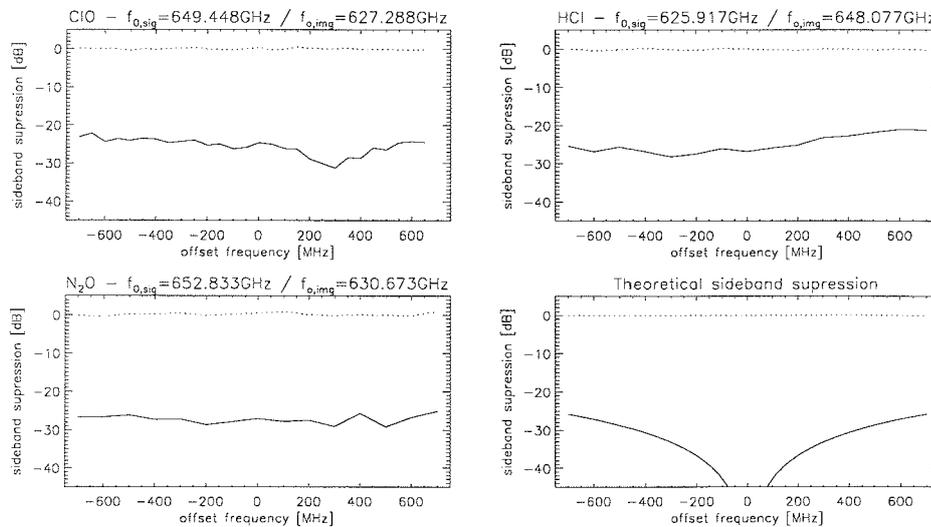


Abbildung 4.6: Messungen der Unterdrückung des Spiegelseitenbandes (durchgezogen) und des Signalbandes (gepunktet) für die wichtigsten Meßfrequenzen des SUMAS/ASUR-Radiometers im Vorfeld der Meßkampagne 1996. Oben links: ClO ($\nu_0=649.448$ GHz), unten links: N₂O ($\nu_0=652.833$ GHz), oben rechts: HCl ($\nu_0=625.9175$ GHz), unten rechts: theoretisch für ein ideales Martin-Puplett-Interferometer zu erwartende Werte.

Abbildung 4.6 zeigt die im Vorfeld der 96er-Kampagne durchgeführten Messungen der Seitenbandtransmission und -unterdrückung für die wichtigsten Meßfrequenzen, sowie die theoretisch nach [Martin & Puplett, 1969] zu erwartenden Werte. Wichtigste Ursachen für die Abweichungen der Messungen von der Theorie sind zum einen die bei den verschiedenen Frequenzen erzielten Leistungen des eingespeisten Signals von lediglich etwa 25 dB über dem Rauschen. Die Messung größerer Unterdrückungen war somit nicht möglich. Andererseits wurden Verluste der als Strahlteiler verwendeten Gitter aus Wolframdraht von ca. 4% festgestellt, welche unter anderem auf Fertigungsprobleme bei der Herstellung der Gitter zurückzuführen sind (Drahtabstände) und ebenfalls zu einer Verschlechterung der Interferometereigenschaften führen. Letztendlich sind die bei den Messungen festgestellten Unterdrückungen von mehr als 20 dB über die gesamte Bandbreite ausreichend, da zusätzlich noch eine Unterdrückung des Spiegelbandes von etwa 10 dB durch den für das jeweilige Signalband optimierten SIS-Mischer addiert werden muß. Da die Linienamplitude im Spiegelband maximal etwa 200 K betragen kann ist somit schlimmstenfalls mit einer Linienamplitude aus dem Spiegelseitenband kleiner als 0.2 K zu rechnen.

Für die spätere Inversion einer spektral aufgelösten Messung ist die **Unterdrückung von Stehwellen**, welche aufgrund von Reflexionen innerhalb des Systems auftreten und nur zum Teil durch die Radiometerkalibration eliminiert werden können, von großer Bedeutung. Hierzu wurden mit Hilfe des „Quick-look“-Systems systematische Messungen vorgenommen und ein optimaler Arbeitspunkt des Weglängenmodulators bestimmt. Darüberhinaus bewirken die während des Meßbetriebs im Forschungsflugzeug auftretenden Vibrationen eine zusätzliche hochfrequente Modulation der Weglängen innerhalb der Optik, sodaß Stehwellen weitgehend unterdrückt werden und nur für die – im Rahmen dieser Arbeit nicht behandelte – Auswertung sehr schwacher Linien (z.B. HO₂) eine Rolle spielen.

Stabilitätsmessungen des Gesamtsystems wurden ebenfalls im Januar 1996 durchgeführt. Die gemäß Gleichung (2.11) ermittelte Allan-Varianz (siehe Abschnitt 2.5) ist in Abbildung 4.7 für einzelne repräsentative Kanäle der verschiedenen Spektrometer sowie einen breitbandigen Leistungsdetektor am Frontend-Ausgang dargestellt. Hierzu wurde für eine längere Meßdauer die spektrale Leistung der kalten Kalibrationslast bei 649 GHz im Labor aufgenommen. Da das statistische Rauschen der einzelnen Kanäle gemäß der Radiometergleichung (2.10) von der Bandbreite abhängt, ist die Allanvarianz am Anfang der Messung aufgrund der geringen Kanalbandbreite von nur 278 KHz für das CTS am größten, AOS (1.4 MHz), Filterbank (8 MHz) und Powermeter (1.2 GHz) verhalten sich entsprechend. Das Minimum der Allanvarianz ist erst nach mindestens 20 s Meßzeit erreicht. Somit zeigen die Labormessungen, daß die gewählte Integrationszeit von 2 s pro Spiegelstellung, aus der bei Berücksichtigung von Kalibrations- und Totzeiten eine Meßzeit von ca. 9 s pro Einzelspektrum resultiert, für alle Spektrometer ausreicht, um Rauschbeiträge aufgrund von Driften im Gesamtsystem wirksam zu unterdrücken.

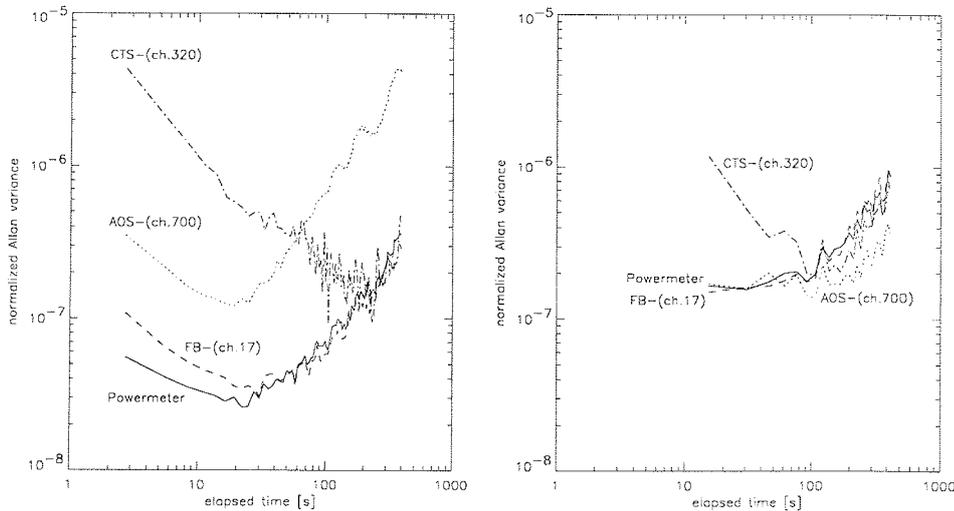


Abbildung 4.7: Allan-Varianz Messung für das SUMAS/ASUR-Radiometer am Beispiel dreier Spektrometerkanäle sowie eines breitbandigen Powermeters am Frontend-Ausgang. Links: Labormessung vom 23.1.1996. Das Minimum der Allanvarianz gibt die maximal zulässige Integrationszeit an und ist für alle Spektrometer größer als 20 s. Rechts ist zum Vergleich die für einen Meßflug am 26.2.96 ermittelte Allanvarianz dargestellt.

Zum Vergleich ist die für einen Meßflug am 26.2.1996 ermittelte Allan-Varianz – wieder für die Messung der kalten Last – dargestellt, wobei die Absolutwerte der Allanvarianz allerdings aufgrund der unterschiedlich optimierten Systemempfindlichkeit nicht direkt verglichen werden können. Da zudem bei dieser Messung entsprechend dem normalen Meßzyklus des SUMAS/ASUR-Systems nur alle 8-10 s eine Messung der kalten Last vorgenommen wurde, konnten die Allanvarianzen für kürzere Meßzeiten nicht ermittelt werden. Aus diesem Grunde sind mit Ausnahme beim CTS die Minima nicht zu erkennen, der deutliche Anstieg der Allanvarianz nach etwa 20 s deutet dennoch auf eine der Labormessung ähnliche Systemstabilität beim Flugbetrieb hin.

Letztendlich kann auch die **Systemempfindlichkeit** über die Empfängerrauschleistung mittels der in 2.4 beschriebenen Y-Faktor Methode spektral aufgelöst bestimmt werden. Dazu muß – wie auch während der Meßflüge bei jedem Umschalten des Meßfrequenzbereichs – jeweils eine **Optimierung des Systems** durchgeführt werden. Hierzu wird zunächst

- die Meßfrequenz durch Umschalten der Referenzfrequenz der PLL und mechanisches Verstimmen des Gunnoszillators sowie Anpassung der Doppler-Biasspannung, bzw. nur durch Umschalten des zweiten Lokoszillators (ab 1997) eingestellt,

- die SSB-Filter Einstellung manuell vorgenommen (Mikrometerschraube),
- das Magnetfeld zur Unterdrückung des Josephson-Effekts anhand der auf einem Oszilloskop dargestellten Strom-Spannungskurve der SIS-Diode angepaßt.

Anschließend kann dann bei Spiegelstellung „Kalte Last“ mittels eines das Signal modulierenden Choppers und eines Lock-In Verstärkers eine Optimierung der Systemempfindlichkeit vorgenommen werden, wobei folgende Parameter variiert werden:

- Arbeitspunkt der SIS-Diode (Bias-Spannung),
- Kurzschlußschieber des Hohlleiters, mischers,
- Lokaloszillatorleistung,
- Diplexerposition (Mikrometerschraube).

Im Laufe der Jahre seit dem Erstflug des ASUR-Empfängers im Dezember 1993 konnte dessen Leistungsfähigkeit durch die Verwendung empfindlicherer SIS-Dioden sowie Verbesserungen hinsichtlich der quasi-optischen Signaleinkopplung erheblich vergrößert werden. Dies liegt zum einen daran, daß SIS-Dioden aufgrund von Toleranzen bei der

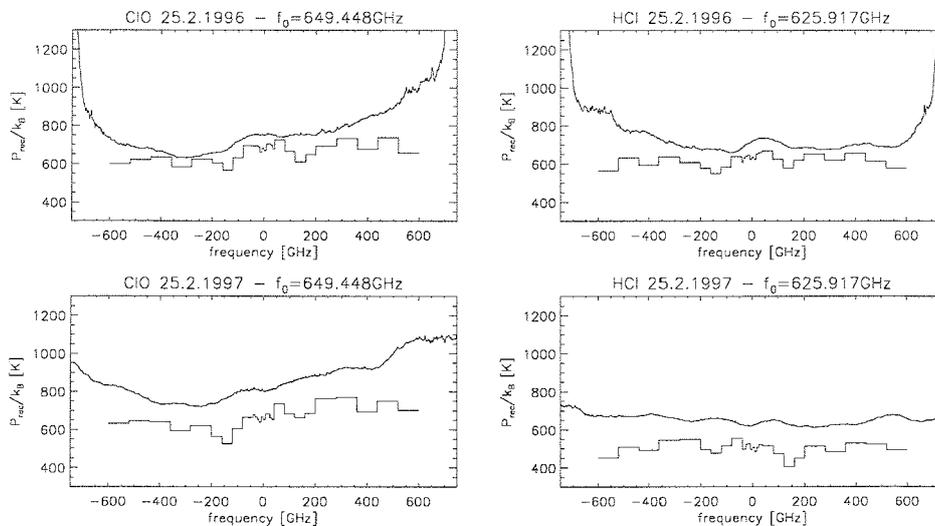


Abbildung 4.8: SUMAS/ASUR-Empfängerausleistungen während der Meßflüge am 25.2.1996 und am 25.2.1997, jeweils für das obere (CIO) und das untere Seitenband (HCI). Hohe Auflösung: AOS, niedrige Auflösung: Filterbank. Die ZF-Bandbreite des ASUR-Frontends wurde erst für die Meßkampagne 1997 an die Bandbreite des AOS angepaßt.

Fertigung recht unterschiedliche Charakteristiken aufweisen können und daher durch eine sorgfältige systematische Untersuchung die für die Meßaufgabe optimalen Dioden ausgewählt werden müssen. Desweiteren ergaben Messungen an der ASUR-Optik eine etwa um 40% zu breite Strahltaille des in den Mischer gekoppelten Strahls. Dieser Effekt war auf einen thermischen Effekt an der auf die Temperatur flüssigen Heliums heruntergekühlte Polyethylenlinse im Mischer zurückzuführen. Die Fehlanpassung aufgrund der veränderten Fokusslänge der Linse konnte schließlich durch eine Reduzierung des Abstands zwischen Linse und Mischer um 2.8 mm ausgeglichen werden [Whyborn *et al.*, 1996]. Frequenz aufgelöste Messungen der 1996 und 1997 erreichten Einseitenbandrauschtemperaturen sind beispielhaft in Abbildung 4.8 dargestellt. Bei sorgfältig durchgeführter Systemoptimierung lassen sich aufgrund der Frequenzcharakteristik der eingesetzten Diode im unteren Seitenband um bis zu 200 K bessere Rauschtemperaturen erzielen als im oberen Seitenband. Zur Verdeutlichung der mit der Zeit erzielten Systemverbesserungen sind die jeweils erzielten mittleren Empfängerrauschtemperaturen in Kapitel 6, Tabelle 6.1, beim Überblick über die zahlreichen Meßkampagnen mitaufgeführt.

4.3 Zusammenfassung: Das SUMAS/ASUR-Instrument

Im ersten Abschnitt des Kapitels wurde der Aufbau des aufgrund der hohen Absorption des Wasserdampfes im Submillimeterwellenbereich bei Flughöhen oberhalb der Tropopause betriebenen Heterodynempfängers ausführlich beschrieben.

Das SUMAS/ASUR-System mißt die thermischen Emissionen zahlreicher für die Ozonchemie wichtiger Moleküle wie ClO, HCl, N₂O und Ozon. Durch eine im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Erweiterung des Spektralbereiches auf 624-632 GHz im unteren sowie 646-654 GHz im oberen Seitenband wurden zudem 1996 die Voraussetzungen zur Detektion weiterer Moleküle mit zum Teil sehr schwachen Emissionslinien wie z.B. HO₂ oder BrO geschaffen. Insbesondere wurde aber auch die Messung einer zweiten, durch Überlappung mit anderen Linien weniger gestörten N₂O-Linie ermöglicht, die in den folgenden Kapiteln noch eine wichtige Rolle spielen wird.

Schlüsselkomponenten des ASUR-Heterodynempfängers sind ein hochempfindlicher SIS-Mischer sowie ein frequenzstabilisierter Festkörper-Lokaloszillator. Ein geeigneter quasi-optischer Aufbau dient zur Einkopplung sowohl des Atmosphären- als auch des Lokaloszillatorsignals, sowie zur Unterdrückung des unerwünschten Seitenbands.

Das SUMAS-Backend übernimmt die Aufgabe der Experimentsteuerung und der Datenaufzeichnung. Für die spektrale Analyse der gemessenen Emissionslinien dienen ein Filterbank-Spektrometer, ein Akusto-Optisches-Spektrometer, sowie ein Chirp-Transform-Spektrometer.

Im zweiten Abschnitt des Kapitels wurden dann die jeweils im Vorfeld der Kampagnen für eine erfolgreiche Durchführung der atmosphärischen Messungen notwendigen Sy-

stemtests und Kalibrationsmessungen dargestellt. Dabei wurde insbesondere auf die Kalibration des Einseitenbandfilters sowie die mit dem Gesamtsystem durchgeführten Allan-Varianz-Stabilitätsmessungen eingegangen. Ferner wurden die während der Meßflüge beim Umschalten zwischen den Meßfrequenzen notwendigen Schritte zur Optimierung der Systemempfindlichkeit ausführlich beschrieben.

Kapitel 5

SUMAS/ASUR: Datenanalyse

Moleküllinien werden vom SUMAS/ASUR-Radiometer in verschiedenen Meßfenstern detektiert. Die Linienamplituden und die Störungen durch Überlappungen mit anderen Spektrallinien sind dabei recht unterschiedlich.

Ozon wird z.B. anhand einer starken Spektrallinie bei 647.840 GHz gemessen. Weil diese Linie in der Linienmitte gesättigt ist, können Ozonmischungsverhältnisse allerdings nur bis zu einer Höhe von etwa 30 km aus diesen Messungen berechnet werden. Bei der Inversion der 627.752 GHz N₂O-Linie müssen die Emissionen einer starken ¹⁸O¹⁶O-Linie bei 627.757 GHz berücksichtigt werden. Aufgrund des bekannten konstanten Mischungsverhältnisses des Sauerstoffs in der Atmosphäre war es möglich, im Rahmen dieser Arbeit einen passender Algorithmus zu entwickeln, der die Sauerstoffemissionen bei der Berechnung der differentiellen Gewichtsfunktionen für N₂O mitberechnet und somit eine recht elegante Korrektur dieser störenden Linie während des Inversionsvorgangs erlaubt. Zudem wurden 1996 die technischen Voraussetzungen für die Messung einer weiteren N₂O-Linie bei 652.833 GHz geschaffen. Diese Linie ist – genau wie die Spektrallinien von ClO (649.448 GHz) und HCl (625.917 GHz) – durch die Überlappung mit den Linienflügeln starker benachbarter Ozonlinien beeinflusst. Die Spektrallinien dieser Spurengase werden deshalb durch die Verwendung eines Simultaninversionsalgorithmus invertiert, der neben den gesuchten Profilen gleichzeitig auch die in den Messungen enthaltene Ozoninformation mitbestimmt. Durch die Verwendung des über die gesamte Bandbreite hochauflösenden Akusto-Optischen-Spektrometers können dabei Ozonprofile insbesondere auch aus einer nicht-gesättigten O₃-Linie im HCl-Spektrum bei 625.372 GHz gewonnen werden. Durch die Verwendung dieses von [Wohlgemuth, 1997] entwickelten Verfahrens zur simultanen Bestimmung von Profilen zweier Spurengase wird eine fehlerbehaftete Ozonkorrektur, welche ansonsten zur Isolation der Spektrallinie durchgeführt werden müßte [Wehr, 1996], vermieden.

5.1 Datenvorverarbeitung

Um geeignete Spektren für die Inversion zu erhalten, sind zunächst einige Schritte der Datenvorverarbeitung erforderlich:

- Kalibration
- Frequenzzeichnung und Mittelung von AOS-Kanälen
- Datenfilterung
- Integration
- Fensterkorrektur

Da für die Inversion ein Signal- zu Rauschverhältnis von etwa 10:1 notwendig ist, müssen die durch die in Abschnitt 2.6 beschriebene **Kalibration** aus den Rohdaten gewonnenen Einzelspektren entsprechend aufintegriert werden. Gleichzeitig wird eine **Datenfilterung** hinsichtlich verschiedener Kriterien wie z.B. dem zugelassenen Rollwinkelbereich des Flugzeuges ($\pm 1.5^\circ$), der Flughöhe (± 100 m), dem Lock-Status der PLL sowie der mittleren Empfängerrauschtemperatur (± 100 K) durchgeführt.

Um beim Akusto-Optischen Spektrometer eine spätere Zuordnung zwischen Kanalzahl und Meßfrequenz zu gewährleisten, wird während eines Meßfluges mehrmals das definierte Spektrum eines Kammgenerators ($\Delta\nu = 100$ MHz) eingespeist. Für die **Frequenzzeichnung** wird dann ein Polynom dritten Grades angepaßt, welches den Zusammenhang zwischen Frequenz und Kanalnummer zum Zeitpunkt der Frequenzzeichnung mit einer Genauigkeit besser als 0.5 MHz liefert.

Desweiteren ist für das Akusto-Optische Spektrometer eine bessere **spektrale Auflösung** in der Linienmitte als bei der Filterbank gewünscht. Eine sehr große Anzahl von Kanälen ist jedoch andererseits aufgrund des Rechenaufwands bei der Inversion von Nachteil, zudem muß für eine höhere Auflösung länger integriert werden. Die Zusammenfassung von jeweils 4 AOS-Kanälen zu einer reduzierten Auflösung von etwa 3.6 MHz stellt somit einen Kompromiß dar.

Die integrierten Spektren müssen schließlich noch hinsichtlich der Reflektions- und Transmissionseigenschaften des **Flugzeugfensters** korrigiert werden. Aufgrund des Einsatzes eines speziell angefertigten, keilförmigen Fensters werden breitbandige Fabry-Perot Resonanzen effektiv bis auf maximal $\Delta T_B \approx 0.5$ K auf 1.2 GHz Bandbreite unterdrückt und können zumeist vernachlässigt werden. Nur im Falle der relativ kleinen Spektrallinie von ClO wird zusätzlich eine lineare Symmetriekorrektur des Spektrums nach

[Wohlgemuth, 1997] durchgeführt. Das frequenzunabhängig korrigierte Spektrum P_{ant}^{atm} ergibt sich gemäß [Crewell, 1993] für jeden Spektrometerkanal aus

$$(5.1) \quad P_{ant}^{Messung} = t P_{ant}^{atm} + (1 - t - r) P_{ant}^{Fenster} + r P_{ant}^{Innen}$$

Hierbei sind t und r die mittleren Leistungstransmissions- bzw. Leistungsreflektionskoeffizienten des Fensters. $t P_{ant}^{atm}$ ist dann die transmittierte spektrale Leistung aus der Atmosphäre, $(1 - t - r) P_{ant}^{Fenster}$ stellt die vom Fenster entsprechend seiner mittleren Temperatur emittierte spektrale Leistung dar und $r P_{ant}^{Innen}$ ist die vom Fenster zurückreflektierte Strahlung des Flugzeuginnenraums. Die durch Labormessungen bestimmten Werte für die Leistungstransmission der zwei verschiedenen verwendeten Fenster sind durch 0.85 (1993-1996) [Crewell, 1993] und 0.90 (1997) [Q. Kleipool, persönliche Mitteilung] gegeben, wobei der Meßfehler zu 0.01 abgeschätzt wurde. Fehler in den Leistungsreflektionskoeffizienten bewirken lediglich eine Unsicherheit im Spektrumoffset und sind deshalb unkritisch. Hier werden der von [Crewell, 1993] angegebene Wert für Polyethylen von 0.04 (bis 1996) sowie der theoretisch für das neue ASUR-Fenster zu erwartenden Wert von 0.0025 (1997) [G. Schwaab, persönliche Mitteilung] angenommen.

5.2 Anpassung des Inversionsverfahrens

Um aus den in den verschiedenen Meßfenstern gemessenen Molekülspektren Spurengasprofile gewinnen zu können, muß das auf der in 3.2 beschriebenen Optimal-Estimation-Methode basierende Inversionsverfahren zunächst noch auf die jeweiligen Bedingungen angepaßt und optimiert werden. Die im Rahmen dieser Arbeit vorgenommenen notwendigen Anpassungen sollen in diesem Abschnitt für jede zu invertierende Linie etwas genauer erläutert werden. Hierbei wird insbesondere auf die für die Inversionen verwendeten **Eingabeparameter**, also

- Spektren und Spektrumkovarianzmatrizen,
- „A priori“-Profile und „A priori“-Kovarianzmatrizen,
- Druck- und Temperaturprofile,
- Spektroskopische Modellparameter

sowie auf die Besonderheiten des jeweiligen Verfahrens, z.B. den neben den gesuchten Mischungsverhältnissen zusätzlich als freie Parameter behandelten Größen, eingegangen.

Desweiteren werden Beispiele für die als **Inversionsergebnis** erhaltenen

- Spurengasprofile und deren Fehlerkovarianzmatrizen

dargestellt und desweiteren die anhand der **Diagnosewerkzeuge**

- Auflösungsmatrix
- Gütefunktion

erhaltenen zusätzlichen Informationen über das Ergebnis der jeweiligen Inversion diskutiert.

5.2.1 Höhenstützstellen

Nichtlinearitäten beim Strahlungstransport durch die Atmosphäre werden bei der Inversion durch ein geeignetes iteratives Verfahren, das in Abschnitt 3.2.3 ausführlich dargestellte *Newton*-Verfahren, berücksichtigt. Die für die Newton-Iteration notwendige Berechnung differentieller Gewichtsfunktionen erfordert die Bildung der Ableitungen des Vorwärtsmodells hinsichtlich aller Inversionsparameter, d.h. hinsichtlich der Mischungsverhältnisse der Spurengase an jeder Stützstelle des verwendeten Höhengitters. Hierzu wurde aus zweierlei Gründen ein Gitter mit Stützstellen bei Flughöhe (≈ 12 km), **16 km**, **20 km**, **24 km**, **30 km**, **40 km**, **50 km** und **70 km** gewählt: Zum einen beträgt die typische Höhenauflösung eines „Uplooking“-Sensors im Millimeter- und Submillimeterbereich nur etwa 8-10 km. Die Verwendung von zusätzlichen Höhenstützstellen bedeutet somit keinen wesentlichen Informationssgewinn und rechtfertigt nicht den zusätzlichen Rechenzeitaufwand. Andererseits wurden im Gegensatz zu dem von [Wohlgemuth, 1997] verwendeten Gitter zwei weitere Stützstellen bei 16 km und 24 km eingefügt, um den oft relativ schmalen ClO-Peak bei etwa 20 km besser modellieren zu können. Die in diesem Höhenbereich berechneten Mischungsverhältnisse sind aufgrunddessen untereinander stärker korreliert.

5.2.2 Allgemeine Eingabeparameter

Für die Strahlungstransportrechnungen sind neben den als gesuchte Inversionsparameter behandelten Spurengasmischungsverhältnissen auch **Druck- und Temperaturprofile** als bekannte Modellparameter anzugeben. Hierfür wurden generell die auf meteorologischen Analysen von Radiosonden- und Satellitendaten beruhenden Druck- und Temperaturprofile des amerikanischen *National Meteorological Centers* (NMC) verwendet

[McPherson et al., 1979], welche interpoliert für die jeweiligen Daten und Positionen der einzelnen Messungen leicht über ein Automailer-System zu erhalten sind.

Allen Inversionen gemein ist desweiteren die Behandlung des **Spektrumoffsets** als freier durch die Inversion zu bestimmender Parameter. Der Offset wird im SUMAS/ASUR-Spektralbereich durch das nichtresonante Stickstoff- und Wasserdampfkontinuum bestimmt und hängt somit vom nicht gemessenen Wasserdampfmischungsverhältnis oberhalb der Flughöhe ab. Für die Berechnung der Gewichtsfunktionen wird das *Liebe-Kontinuum* (Gleichung 3.13) bei einem geschätzten stratosphärischen Wasserdampfgehalt von konstant 3 ppmv verwendet. Hierdurch wird der ohnehin sehr kleine Fehler aufgrund der nicht genau bekannten Wasserdampfabsorption der unteren Stratosphäre weiter vermindert. Desweiteren trägt eine Unsicherheit bei der Korrektur hinsichtlich der Eigenemissionen des Flugzeugfensters sowie der vom Fenster reflektierten Innenraumstrahlung zum Spektrumoffset bei. Vor den Inversionen wird daher anhand eines Referenzkanals am Rande des Spektrums eine Abschätzung des Offsets und seines Fehlers vorgenommen. Der „A priori“-Wert des Spektrumoffsets ergibt sich dabei aus der Differenz der Helligkeitstemperaturen zwischen dem gemessenen Spektrum und einem aus den „A priori“-Profilen berechneten Modellspektrum. Die „A priori“-Unsicherheit des Spektrumoffsets wird mit Hilfe einer weiteren Strahlungstransferrechnung aus dem „A priori“-Fehler der eingehenden Spurengasprofile abgeschätzt.

Aufgrund der begrenzten Bandbreite beinhalten die Messungen nur wenig Information aus dem Höhenbereich direkt oberhalb der Flughöhe. Zur Stabilisierung des Inversionsalgorithmus wird aus diesem Grunde das **„A priori“-Profil bei Flughöhe** durch Annahme eines kleineren Fehlers stärker gewichtet.

Die Varianzen der Spektrometerkanäle werden für die **Spektrumkovarianzmatrizen** gemäß der *Radiometergleichung* aus (2.10) entsprechend dem statistischen Rauschen aus der gegebenen Bandbreite, Integrationszeit, sowie der Empfängerrauschleistung berechnet. Aus verschiedenen Gründen ist das tatsächlich beobachtete Rauschen allerdings im allgemeinen größer als theoretisch erwartet. Dies liegt zum einen an Instabilitäten der Spektrometerkanäle, die aufgrund der während der Meßflüge mitunter auftretenden starken Temperaturschwankungen von bis zu 20°C auftreten können. Diese führen z.B. zu mechanischen Spannungen der innerhalb des Filterbankspektrometers eingesetzten Bandpaßfilter und ZF-Komponenten bzw. zu Dejustierungen der AOS-Optik, wenn deren Temperaturstabilisierung überlastet ist. Auch spielen die durch die Flugzeugtriebwerke verursachten hochfrequenten Vibrationen beim Meßbetrieb eine Rolle. Zudem konnte bei unruhigen Flugbedingungen eine erschütterungsbedingte Beeinflussung der Spektrumbaseline im Quick-look-System zuweilen beobachtet werden. Um diesen zusätzlichen Effekten Rechnung zu tragen werden die Varianzen des rein statistischen Rauschens beim Aufstellen der diagonal angenommenen Spektrumkovarianzmatrizen mit einem Faktor 10 multipliziert, was eine konservative Abschätzung des tatsächlichen Meßfehlers darstellt. Die zusätzlichen Fehler der Messung werden also durch einen hinreichend großen gauß'schen

Fehler angenähert. Dieses Vorgehen resultiert natürlich in einem größeren Fehler für die Inversionsergebnisse, der nicht nur dem rein statistischen Rauschen der Messung entspricht, sondern auch Instabilitäten und systematische Effekte berücksichtigt. Dieser soll im Folgenden der Einfachheit halber dennoch als statistischer Fehler bezeichnet werden. Beim Filterbankspektrometer wurden darüberhinaus einige für Störungen besonders anfällige Kanäle festgestellt. Diese Kanäle (1996: Nr. 9,11,22,23,25, 1997: Nr. 5,6,22,23, siehe Tabelle A.3) werden durch die Wahl eines sehr hohen Fehlers bei den Inversionen nicht berücksichtigt.

Aufgrund der in allen Fällen nur schwachen Nichtlinearitäten konvergiert das Newton-Verfahren schnell, sodaß nach spätestens drei **Iterationen** keine signifikanten Veränderungen der Gütefunktionen mehr festgestellt werden konnten.

Die von [Wohlgemuth, 1997] entwickelte Methode der **simultanen Ozoninversion** verlangt eine Ozonmessung bei 647.840 GHz als zweites Eingabespektrum neben dem jeweiligen Spurengasspektrum. Dieses zeitlich versetzt gemessene Ozonspektrum wird jedoch in allen Fällen durch die Wahl eines sehr hohen Fehlers (100 K) bei Aufstellen der Spektrumkovarianzmatrix praktisch nicht bei der Simultaninversion berücksichtigt, sodaß nur die Ozoninformationen im Spurengasspektrum in das berechnete Ozonprofil eingehen.

Während bei den **Modellparametern** die Linienintensitäten im allgemein recht gut bekannt sind, stellen gemäß einer für das SUMAS-Gerät durchgeführten Fehleranalyse die Fehler des Druckverbreiterungsparameter neben den Fehlern der Druck- und Temperaturprofile die eigentlich kritischen Größen für den Modellparameterfehler der Inversion dar, wengleich dieser zumeist klein gegenüber dem Fehler aufgrund des rein statistischen Rauschens ist [Wehr et al., 1995] [Wehr, 1996]. Im Gegensatz zum Millimeterwellenbereich sind die Druckverbreiterungsparameter im Submillimeterbereich nur selten bekannt. Die für die Inversionsrechnungen verwendeten Werte der hier betrachteten Übergänge im SUMAS/ASUR-Spektralbereich sind daher im Anhang in Tabelle A.2 aufgelistet.

Die **Antennencharakteristik** spielt bei der Beobachtungsgeometrie des SUMAS/ASUR-Radiometers aufgrund der nur geringen Strahlaufweitung von 1.3° (FWHM) nur eine untergeordnete Rolle und kann bei der Berechnung der Gewichtsfunktionen durch eine ideale „Pencil-beam“ Antenne angenähert werden. Kritischer ist hingegen der **Meßzenitwinkel**, welcher im Vorfeld der Messung nach dem Einbau in das Forschungsflugzeug mit einer Genauigkeit von ca. $\pm 1^\circ$ experimentell kalibriert wird. Diese Kalibrationsungenauigkeit kann wie Modellrechnungen ergeben zu einem systematischen Fehler von bis zu 5% in den Linienamplituden führen.

5.2.3 ClO – 649.448 GHz

Für die Inversion der ClO-Spektrallinie bei 649.448 GHz werden sowohl Filterbank als auch AOS-Spektren verwendet, wobei die AOS-Kanäle zu einer der Filterbank entsprechenden Auflösung zusammengefaßt werden. Die Kanäle 23 und 24 werden aufgrund einer kleinen HO₂-Linie in ihrem Bereich durch die Wahl eines großen Fehlers nicht berücksichtigt.

Eine Auflösung von 8 MHz in der Linienmitte ist für die ClO-Inversion ausreichend, da a priori kein ClO oberhalb von 50 km erwartet wird. Es kann von einer 2-Schicht Struktur des ClO-Profiles ausgegangen werden (z.B. [de Zafrá et al., 1989]). Ein oberer ClO-Peak wird bei etwa 40 km angenommen. Ein unterer Peak bei einer Höhe von ca. 20 km ist für Situationen gestörter Chemie aufgrund heterogener chemischer Reaktionen an den Oberflächen der in diesen Höhen auftretenden stratosphärischen Aerosole oder polaren stratosphärischen Wolken (PSC's) zu erwarten. Da ClO zudem einen starken Tagesgang hat, werden die Unsicherheiten dieser Schichten recht groß angenommen. Das für die

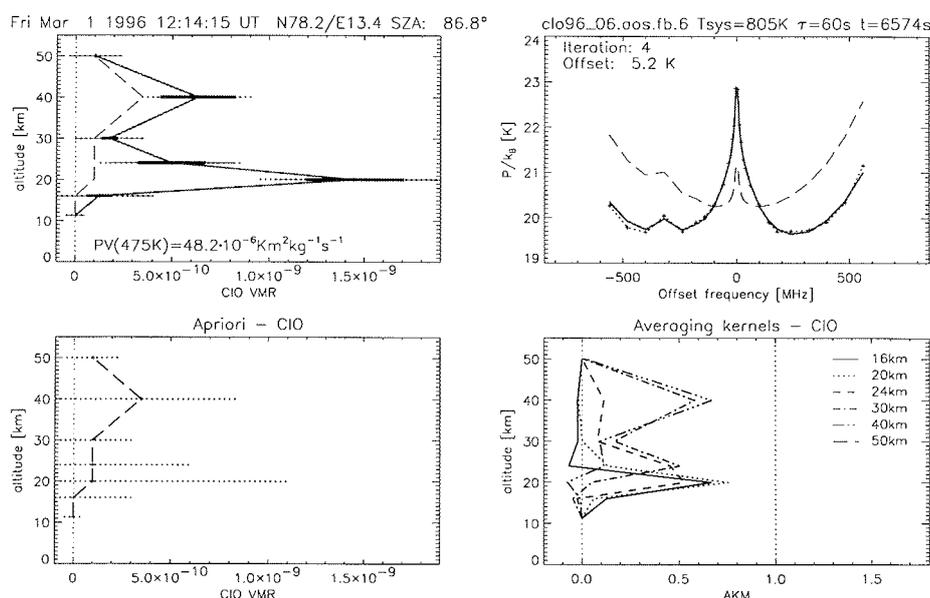


Abbildung 5.1: Inversion einer ClO-Messung bei 649.448 GHz vom 1.3.1996 über Spitzbergen. Oben links: Berechnetes Profil mit Fehlerbalken. Dick-ausgezogen: Meßfehler, dünn-ausgezogen: Glättungsfehler, gepunktet: Gesamtfehler (Erklärung siehe Abschnitt 3.2.4). Oben rechts: Gemessenes Spektrum (Kreuze) und Reproduktion. Zum Vergleich sind gestrichelt das „A priori“-Profil für ungestörte Chemie bzw. das aus dem „A priori“-Profil berechnete Spektrum dargestellt. Unten links: „A priori“-Profil mit angenommenen 1 σ -Unsicherheiten. Unten rechts: Auflösungskernfunktionen für ClO.

CIO-Inversionen verwendete „A priori“-Profil für ungestörte Chemie und die für die diagonale Kovarianzmatrix angenommenen „A priori“-Unsicherheiten der einzelnen Höhengschichten sind in Abbildung 5.1 dargestellt. Ebenfalls dargestellt ist beispielhaft das sich als Ergebnis einer Inversion erhaltene CIO-Profil und die dabei berechnete Auflösungs-matrix, welche einen Eindruck über die Höhengauflösung und den Einfluß der Messung liefert. Hierbei läßt sich feststellen, daß sich durch die etwas stärkere Wichtung des „A priori“-Mischungsverhältnisses bei 30 km im wesentlichen zwei CIO-Schichten im Bereich 16-24 km und bei 40 km ergeben. Im Bereich 16-24 km überlappen die hier relevanten Auflösungs-funktionen recht stark.

Trotz der Wahl eines „A priori“-Profils für ungestörte Chemie ergibt sich für die hier dargestellte Messung vom 1.3.1996 über Spitzbergen (N 78.2° / E 13.4°) als deutlicher Hinweis auf eine Situation gestörter Chemie ein CIO-Peak von 1.5 ± 0.25 ppbv in einer Höhe von 20 km. Der obere CIO-Peak beläuft sich auf 0.65 ± 0.2 ppbv und ist typisch für solch eine Messung um die Mittagszeit, wenn sich ein photochemisches Gleichgewicht eingestellt hat. Die Fehlerangaben beziehen sich hierbei auf den statistischen Meßfehler (siehe auch 5.2.2). In Abbildung 5.1 (oben links) ist dieser dick-ausgezogen dargestellt. Zusätzlich sind der Glättungsfehler dünn-ausgezogen und der resultierende Gesamtfehler gepunktet eingezeichnet. Eine genauere Erläuterung der Fehler ist Abschnitt 3.2.4 zu entnehmen.

5.2.4 HCl – 625.917 GHz und O₃ – 625.372 GHz

HCl-Profile werden vorwiegend aus den Spektren des Akusto-Optischen Spektrometers berechnet, da aufgrund der beim AOS hohen Auflösung über die gesamte Bandbreite dann gleichzeitig Ozonprofile aus der Ozonlinie bei 625.372 GHz gewonnen werden können. Neben dem Spektrumoffset wird zusätzlich die Mittenfrequenz des gemessenen Spektrums als zu bestimmender Inversionsparameter behandelt. Die während der Messungen aufgrund von Temperaturschwankungen möglichen Verschiebungen des AOS-Spektrums gegenüber den bei den Frequenzzeichnungen ermittelten Mittenfrequenzen liegen in der Größenordnung ± 1 MHz. Dieser Effekt könnte bei der relativ hohen Auflösung von 3.6 MHz zu einer Unterschätzung des Ozonmischungsverhältnis bei Höhen größer als 40 km führen. Die Behandlung der Spektrummittenfrequenz als zu bestimmender Inversionsparameter stellt gewissermaßen eine Anpassung der nur zu Beginn und gegen Ende der Meßflüge durchgeführten Frequenzzeichnungen für die Zeitpunkte der Messungen dar. In Abbildung 5.2 sind die für die Inversionen verwendeten „A priori“-Profile sowie die berechneten Auflösungs-matrizen für HCl und O₃ dargestellt. Durch die Summe der Auflösungs-funktionen läßt sich nach (3.28) der Einfluß der „A priori“-Information auf die Messung für eine betrachtete Höhengstützstelle abschätzen. Ein dominanter Einfluß der Messung ergibt sich somit für beide Moleküle im Höhenbereich zwischen 16 km und 50 km. In Abbildung 5.3 ist ein Beispiel für eine simultane HCl- und Ozonprofilbestim-

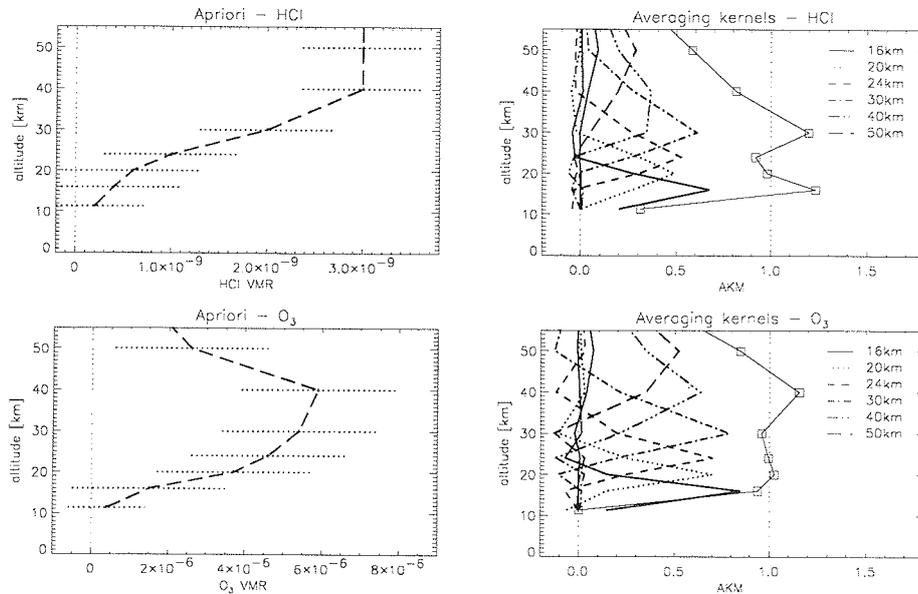


Abbildung 5.2: Darstellung der „A priori“-Profile und Auflösungsmatrizen für die Simultainversion von HCl (625.917 GHz) und O₃ (625.372 GHz). Oben links: „A priori“-Profil für HCl. Oben rechts: Auflösungskernfunktionen für HCl mit Summenfunktion über die Höhe. Unten links: „A priori“-Profil für O₃. Unten rechts: Auflösungskernfunktionen für O₃. Die Summe der Auflösungskernfunktionen geben – als Kästen dargestellt – den Einfluß der Messung gegenüber dem „A priori“-Profil in der jeweiligen Höhe an.

mung – wieder für den 1.3.96 über Spitzbergen – dargestellt. Bei dieser Meßsituation innerhalb des polaren Wirbels werden sehr geringe HCl-Werte im Höhenbereich unterhalb 20 km ermittelt, da zu dieser Zeit sehr viel Chlor in der aktiven Form (ClO) vorliegt.

5.2.5 O₃ – 647.840 GHz

Das vom Observatoire de Paris-Meudon entwickelte Akusto-Optische Spektrometer wurde zum erstenmal in der zweiten Hälfte der SESAME III Meßkampagne im März 1995 erfolgreich eingesetzt. Zuvor wurden O₃-Profile ausschließlich aus der starken Ozonlinie bei 647.840 GHz berechnet [Wöhlgemuth *et al.*, 1995] [Franke, 1995] [Urban *et al.*, 1996]. Da diese Linie in der Linienmitte optisch dicht ist, konnten glaubwürdige Ozonprofile lediglich bis zu einer Höhe von etwa 30 km abgeleitet werden. Oberhalb führte die starke Nichtlinearität in der Linienmitte nur bei sehr kleinen Ozonsäulen zu brauchbaren Ergebnissen. Diese Linie wird daher ab 1996 nicht mehr zur Ozonbestimmung ausgenutzt.

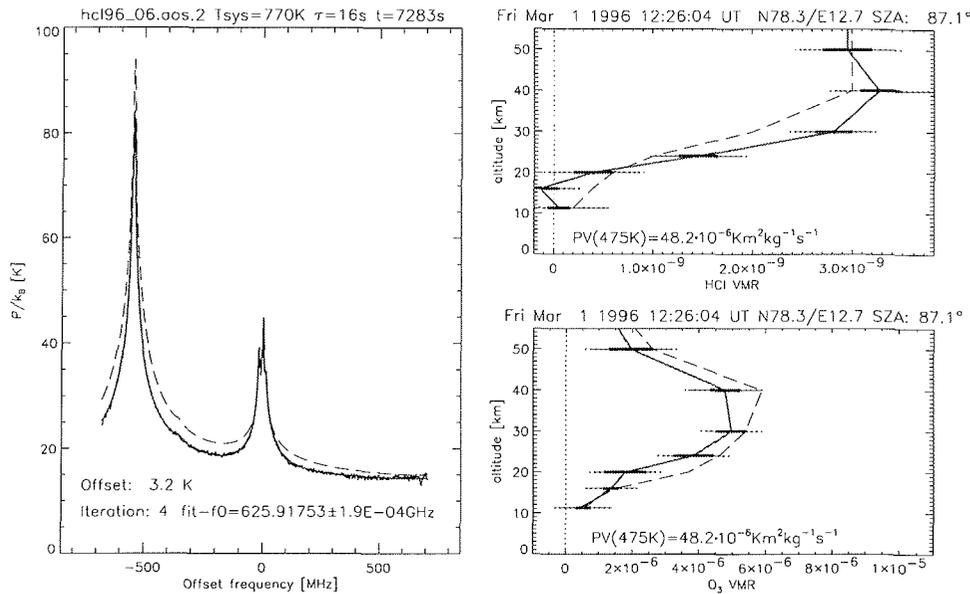


Abbildung 5.3: Beispiel für die simultane Inversion von HCl und Ozon aus einer Messung bei 625.917 GHz am 1.3.96 über Spitzbergen. Die „A priori“-Profile bzw. das daraus berechnete Modellspektrum sind zum Vergleich jeweils gestrichelt miteingezeichnet.

5.2.6 N₂O – 627.752 GHz

Für die Inversion der 627.752 GHz N₂O-Linie muß eine Korrektur hinsichtlich der Emissionen einer starken ¹⁸O¹⁶O-Linie bei nahezu gleicher Frequenz (627.757 GHz) durchgeführt werden. Sauerstoff ist ein Hauptbestandteil der Atmosphäre mit einem bekannten, über die Höhe konstanten Mischungsverhältnis von 0.2095. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein passender Algorithmus entwickelt, der die Sauerstoffemissionen bei der Berechnung der differentiellen Gewichtsfunktionen für N₂O mitberechnet und somit eine elegante Korrektur während des Inversionsvorgangs erlaubt, was eine umständliche Vorkorrektur der Spektren, wie sie zuvor von [de Valk et al., 1997] angewandt wurde, überflüssig macht. Für dieses Verfahren werden ausschließlich die hochaufgelösten AOS-Spektren verwendet, wobei die Spektrummittenfrequenz wieder als unbekannter Inversionsparameter mitbestimmt wird. Desweiteren wird neben dem Spektrumoffset zusätzlich auch die Transmission der unteren Stratosphäre als unbekannter Parameter behandelt. Die Messung der gegenüber der N₂O-Linie leicht versetzten Sauerstofflinie liefert im Grunde genügend Information zur Bestimmung der Transmission. Als Unsicherheit wird a priori

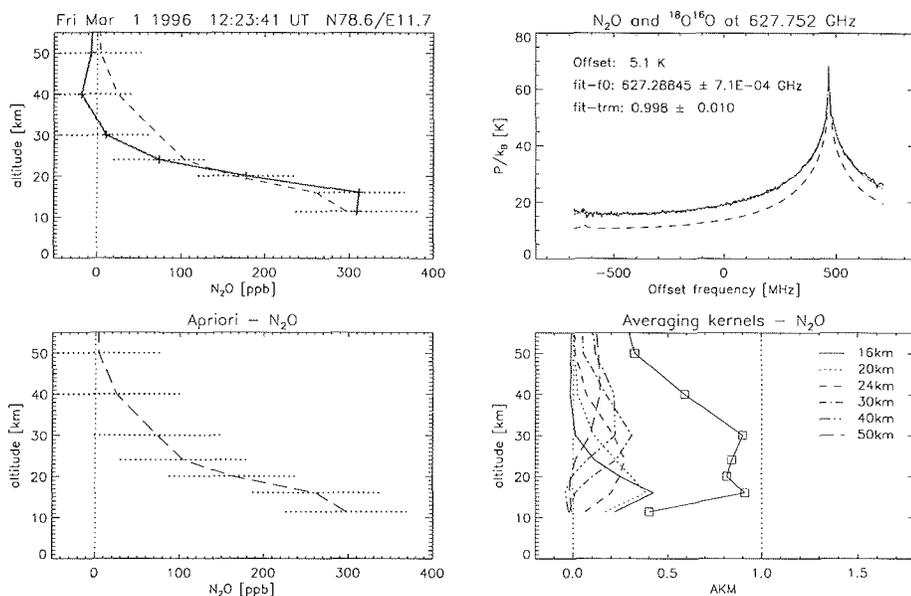


Abbildung 5.4: Inversion einer Messung der 627.752 GHz N_2O -Linie vom 1.3.1996 innerhalb des Polarwirbels über Spitzbergen. Oben links: Berechnetes Profil mit Fehlerbalken. Oben rechts: Gemessenes Spektrum überlagert mit der Reproduktion. Zum Vergleich ist gestrichelt das aus dem „A priori“-Profil berechnete Spektrum dargestellt. Desweiteren sind die Ergebnisse für die zusätzlichen freien Parameter Spektrum-Offset, Mittenfrequenz und Transmission angegeben. Unten links: „A priori“-Profil mit angenommenen 1σ -Unsicherheiten. Unten rechts: Auflösungsfunktionen für die N_2O -Messung sowie Summe der Auflösungsfunktionen.

1% angenommen. In den Parameter für die Transmission geht auch die Unsicherheit der Korrektur hinsichtlich der Fenstertransmission ein, da beide Effekte eine Skalierung des gemessenen Spektrums bewirken und somit prinzipiell nicht zu unterscheiden sind.

Im Submillimeterbereich sind die spektroskopischen Modellparameter nur für wenige Linien bekannt. Bei der Inversion der 627.752 GHz- N_2O -Linie führen insbesondere die Modellparameterfehler hinsichtlich der nicht hinreichend genau bekannten Druckverbreiterung von N_2O und $^{18}O^{16}O$ sowie die Unsicherheiten der Druck- und Temperaturprofile zu einem systematischen Fehler, der sich insbesondere bei Höhen unterhalb von 20 km durch unrealistisch große Mischungsverhältnisse bemerkbar macht. Auf diesen Sachverhalt wird später durch einen Vergleich mit ballongestützten Instrumenten in Abschnitt 5.4 näher eingegangen.

Abbildung 5.4 zeigt zunächst eine SUMAS/ASUR-Messung der 627.752 GHz N_2O -Linie vom 1.3.96 über Spitzbergen. Das für die Inversion verwendete „A priori“-Profil entstammt einem Modell für den subarktischen Winter und ist mit den angenommenen Feh-

lern und der berechneten Auflösungsmatrix ebenfalls in Abbildung 5.4 zu finden. Das bekannte gegenwärtige N_2O -Mischungsverhältnis von ca. 315 ppbv in der Troposphäre [Crewell *et al.*, 1996] wird durch den für die Inversion verwendeten „A priori“-Wert bei 12 km recht gut repräsentiert. Aus dem Vergleich mit dem „A priori“-Profil läßt sich aufgrund der geringeren Mischungsverhältnisse der Messung oberhalb von etwa 22 km das erwartete Absinken der Luft innerhalb des Polarwirbels bestätigen. Bei 40 km ergeben sich durch Überschwingen des Inversionsergebnisses negative Werte, wobei dieser Effekt allerdings klein gegenüber dem dargestellten 1σ -Meßfehler ist. In der unteren Stratosphäre werden im Gegensatz dazu relativ hohe N_2O -Mischungsverhältnisse von etwa 320 ± 50 ppbv bei 16 km ermittelt, während der Wert bei Flughöhe nur noch die „A priori“-Information widerspiegelt.

N_2O hat ausschließlich troposphärische Quellen und wird nach dem Transport in die Stratosphäre durch die Tropopause der Tropen aufgrund der Photolyse in großen Höhen zerstört, was in einer Lebensdauer von etwa einem Jahr unterhalb von 33 km Höhe resultiert [Brasseur & Solomon]. Da also die N_2O Konzentrationen nur durch Transportprozesse wie das Absinken im Polarwirbel verändert wird, ist die Annahme einer Korrelation zwischen den N_2O -Konzentrationen unterschiedlicher Höhen gerechtfertigt, was zur Unterdrückung von Überschwingern bei der Inversion ausgenutzt werden kann. Zur Stabilisierung des Verfahrens wurden aus diesem Grunde nicht-diagonale Elemente bei der Aufstellung der „A priori“-Kovarianzmatrix berücksichtigt, wobei ein mit dem Abstand von der jeweiligen Höhenschicht exponentieller Abfall der Kovarianzen mit einer Halbwertsbreite von 5 km angenommen wird. Gegenüber einer diagonalen Kovarianzmatrix wird bei dem verwendeten, ohnehin nur grob aufgelösten Höhengitter jedoch lediglich eine geringfügige Wirkung erzielt.

Eine stabile Inversion ist letztendlich wegen der Vielzahl von unsicheren Modellparametern aufgrund der Überlagerung mit der starken $^{18}O^{16}O$ -Linie nur mit einer schwächeren Wichtung der Messung gegenüber dem „A priori“-Profil möglich. Dies wird durch die Multiplikation des statistischen Rauschens mit dem Faktor 30 bei der Berechnung der Spektrumkovarianzmatrix erreicht. Aus den ebenfalls in Abbildung 5.4 dargestellten Summen der Auflösungsfunktionen für die verschiedenen Höhenstützstellen läßt sich letztendlich abschätzen, daß nur im Höhenbereich zwischen 16 und 30 km der Einfluß der Messung überwiegt. Die Messungen der 627.752 GHz N_2O -Linie eignen sich somit gut für die Bestimmung von Änderungen der vertikalen Struktur der Stratosphäre z.B. beim Überfliegen des Wirbelrandes. Die Absolutwerte der Mischungsverhältnisse sind allerdings durch systematische Modellparameterfehler sowie durch das stabilisierende „A priori“-Profil nicht unwesentlich beeinflusst.

5.2.7 N₂O – 652.833 GHz

1996 wurden schließlich im Rahmen dieser Arbeit die technischen Voraussetzungen für die Messung einer zweiten, durch Überlagerung mit anderen Linien weniger beeinflussten N₂O-Linie bei 652.833 GHz durch die Erweiterung des ASUR-Frequenzbereichs geschaffen. Hierzu mußte ein als Referenz innerhalb der ASUR-PLL eingesetzter Festfrequenzoszillator modifiziert werden (siehe Appendix A.1). Für die Inversion dieser Linie wird wieder der für ClO und HCl eingesetzte Simultaninversionsalgorithmus eingesetzt, da die Spektrallinie von dem Linienflügel einer benachbarten Ozonlinie beeinflusst wird. AOS- und Filterbankspektren sind gleichermaßen geeignet. Ein Beispiel für eine Inversion der 652.833 GHz N₂O-Linie ist in Abbildung 5.5 mit dem verwendeten „A priori“-Profil und der berechneten Höhenauflösungsmatrix dargestellt. Die Messung dominiert im Höhenbereich 16-50 km, wo der Einfluß des „A priori“-Profils klein ist. Die Messung dieser Linie stellt hinsichtlich der Datenqualität eine deutliche Verbesserung der N₂O-Messungen mit dem SUMAS/ASUR-System dar. Durch den Vergleich mit dem „A priori“-Profil für die

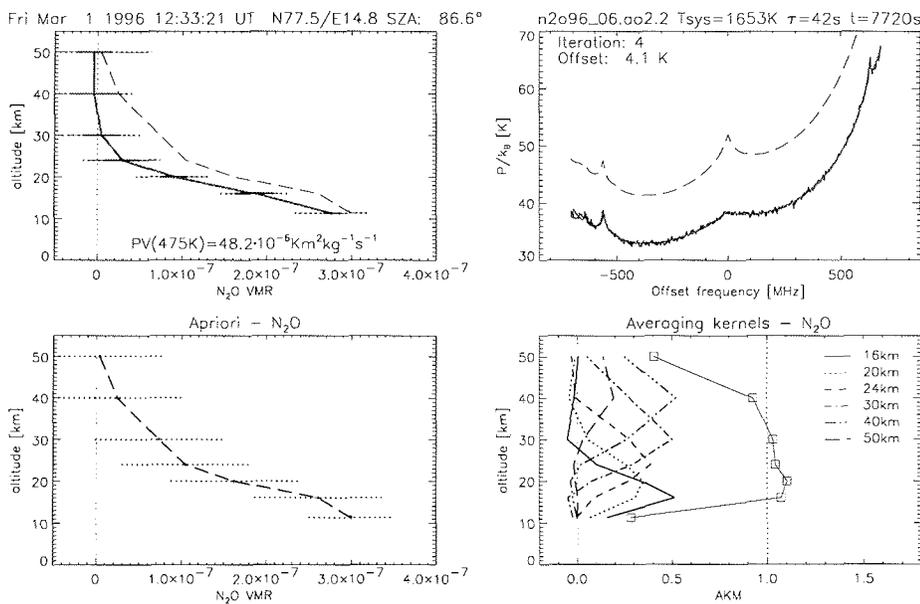


Abbildung 5.5: Inversion einer N₂O-Messung bei 652.833 GHz vom 1.3.1996 über Spitzbergen. Oben links: Berechnetes Profil mit Fehlerbalken. Dick-ausgezogen: Meßfehler, dünn-ausgezogen: Glättungsfehler, gepunktet: Gesamtfehler. Oben rechts: Gemessenes Spektrum und Reproduktion. Zum Vergleich sind gestrichelt das „A priori“-Profil für subpolaren Winter bzw. das aus dem „A priori“-Profil berechnete Spektrum dargestellt. Unten links: „A priori“-Profil mit angenommenen 1 σ -Unsicherheiten. Unten rechts: Auflösungskernfunktionen für die N₂O-Messung mit Summe der Auflösungskernfunktionen (Kästen).

wiederum dargestellte Messung vom 1.3.96 über Spitzbergen läßt sich ein starkes Absinken der Luftmassen im Polarwirbel feststellen. Hierbei werden über den gesamten Höhenbereich geringere Mischungsverhältnisse als beim Inversionsergebnis der 627.752 GHz-Messung ermittelt.

5.3 Auflösung und Fehler der Messungen

Die **Höhenauflösung** kann aus den Auflösungsmatrizen bei Verwendung eines geeigneten Kriteriums berechnet werden. Neben der einfachen Bestimmung der Halbwertsbreite des Hauptmaximums der Auflösungsfunktionen (FWHM) eignet sich hierzu z.B. das folgende von [Eriksson, 1996] vorgeschlagene Kriterium, welches auch negative Werte und Nebenmaxima berücksichtigt.

Zunächst muß für eine betrachtete Höhenstützstelle z_r eine normierte Funktion des Integrals der Absolutwerte der Auflösungsfunktion über die Höhe berechnet werden, welche die normierte Fläche der Auflösungsfunktion bis zur Höhe z angibt:

$$(5.2) \quad f(z_r, z) = \frac{\int_0^z |A(z_r, z)| dz}{\int_0^\infty |A(z_r, z)| dz}$$

Die gesuchte Breite der Auflösungsfunktion soll nun einem Anteil von 0.683 der Absolutfläche der Auflösungsfunktion entsprechen, was anschaulich durch eine Gaußfunktion der Gesamtbreite $\sigma_{0,683}$ zwischen ihren beiden Wendepunkten gegeben ist. Die gesuchte Breite der Auflösungsfunktion soll also folgende Bedingung erfüllen:

$$(5.3) \quad f(z_r, z = z_c + 1/2 \sigma_{0,683}) - f(z_r, z = z_c - 1/2 \sigma_{0,683}) = 0.683$$

Die mittlere Höhe der Auflösungsfunktion kann von der nominalen Höhe der Inversionsstützstelle z_r abweichen und ist als die Höhe z_c definiert, die die $\sigma_{0,683}$ -Breite der Auflösungsfunktion minimiert. z_c und $\sigma_{0,683}$ können iterativ bestimmt werden. Die $\sigma_{0,683}$ -Breite als Maß für die Höhenauflösung einer Fernerkundungsmessung ist im allgemeinen größer als das gewöhnlich betrachtete Kriterium der vollen Halbwertsbreite des Hauptmaximums der Auflösungsfunktionen (FWHM). Aufgrund der Berücksichtigung von Nebenmaxima und negativen Werten stellt sie jedoch eine etwas realistischere Annäherung an die tatsächliche Glättung des Inversionsergebnisses gegenüber dem „wahren“ Profil dar.

Aus den auf diese Weise berechneten Höhenauflösungen kann die **horizontale Auflösung senkrecht zur Flugrichtung** durch einfache geometrische Überlegungen unter Berücksichtigung des Meßzenitwinkels (78°) und der Strahlaufweitung (1.3°) abgeschätzt werden.

Molekül	Linienfrequenz	Nominale Höhe der Stützstelle [km]					
		16	20	24	30	40	50
ClO	1 σ -Meßfehler [ppbv]	0.07	0.3	0.2	0.04	0.2	0.01
	1 σ -Gesamtfehler [ppbv]	0.3	0.5	0.4	0.2	0.3	0.1
	Vertikale Auflösung $\sigma_{0.683}$ [km]	5.8	5.3	10.9	18.1	11.4	9.9
	bei einer mittleren Höhe z_c [km]	19.8	20.3	22.6	33.1	39.6	40.0
	Auflösung senkrecht zur Flugbahn [km]	29	26	54	90	57	49
649.448 GHz	Auflösung entlang der Flugbahn [km]	≤ 35					
HCl	1 σ -Meßfehler [ppbv]	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.3
	1 σ -Gesamtfehler [ppbv]	0.4	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	Vertikale Auflösung $\sigma_{0.683}$ [km]	6.8	9.9	11.7	14.6	21.3	21.9
	bei einer mittleren Höhe z_c [km]	15.8	20.1	25.1	31.8	38.6	49.3
	Auflösung senkrecht zur Flugbahn [km]	34	49	58	73	106	109
625.917 GHz	Auflösung entlang der Flugbahn [km]	≤ 12					
O ₃	1 σ -Meßfehler [ppmv]	0.2	0.6	0.6	0.5	0.5	0.7
	1 σ -Gesamtfehler [ppmv]	0.8	1.1	1.1	0.9	1.2	1.4
	Vertikale Auflösung $\sigma_{0.683}$ [km]	5.4	7.9	10.5	13.7	20.1	19.0
	bei einer mittleren Höhe z_c [km]	15.8	20.1	24.8	31.8	42.1	48.5
	Auflösung senkrecht zur Flugbahn [km]	27	39	52	68	100	95
625.372 GHz	Auflösung entlang der Flugbahn [km]	≤ 12					
N ₂ O ⁽¹⁾	1 σ -Gesamtfehler [ppmv]	0.05	0.06	0.05	0.05	0.06	0.06
	Vertikale Auflösung $\sigma_{0.683}$ [km]	11.1	12.7	17.0	27.9	36.5	37.7
	bei einer mittleren Höhe z_c [km]	19.4	21.4	26.4	34.1	44.4	53.3
	Auflösung senkrecht zur Flugbahn [km]	55	63	85	139	182	188
	627.752 GHz	Auflösung entlang der Flugbahn [km]	≤ 12				
N ₂ O ⁽²⁾	1 σ -Meßfehler [ppmv]	0.02	0.02	0.02	0.02	0.03	0.02
	1 σ -Gesamtfehler [ppmv]	0.04	0.04	0.05	0.05	0.06	0.07
	Vertikale Auflösung $\sigma_{0.683}$ [km]	8.35	11.2	12.5	15.5	14.1	11.9
	bei einer mittleren Höhe z_c [km]	17.1	19.6	25.3	31.8	40.1	43.0
	Auflösung senkrecht zur Flugbahn [km]	42	56	62	77	70	59
652.833 GHz	Auflösung entlang der Flugbahn [km]	≤ 25					

Tabelle 5.1: Fehler und Auflösung der SUMAS/ASUR-Messungen von ClO, HCl, O₃ und N₂O im Höhenbereich 16-50 km am Beispiel einer Messung über Spitzbergen am 1.3.1996. Die vertikale Auflösung wurde mit dem $\sigma_{0.683}$ -Kriterium aus den Auflösungsfunktionen bestimmt und die minimale horizontale Auflösung senkrecht zur Flugbahn für einen Meßzenitwinkel von 78° bei Berücksichtigung der Strahlaufweitung daraus abgeschätzt. Die horizontale Auflösung in Flugrichtung ergibt sich durch die notwendigen Integrationszeiten für die verschiedenen Moleküle (ClO: 60 s, HCl/O₃/N₂O⁽¹⁾: 20 s, N₂O⁽²⁾ 40 s) sowie den zu berücksichtigenden Kalibrations- und Totzeiten. Desweiteren wurde eine mittlere Geschwindigkeit des Forschungsflugzeuges von 700 km/h angenommen.

Die **horizontale Auflösung in Flugrichtung** ergibt sich durch die notwendigen Integrationszeiten für die verschiedenen Moleküle sowie den zu berücksichtigenden Kalibrations- und Totzeiten (Faktor 2 bzw. 1.5 der Integrationszeit) aus der Geschwindigkeit des Forschungsflugzeuges. Bei den SUMAS/ASUR-Messungen ist neben der Systemempfindlichkeit die Stabilität des Systems der entscheidende Faktor, welcher durch die jeweiligen äußeren Bedingungen während der Meßflüge (Flugeigenschaften, Temperaturschwankungen) bestimmt ist und unter Umständen zu Baseline-Effekten oder Spikes in den Einzelspektren führen kann. Um diesen recht variablen Bedingungen Rechnung zu tragen, wird für jedes Molekül eine größere Anzahl von Einzelspektren zusammengefaßt, als dies aufgrund des rein statistischen Empfängerrauschens notwendig wäre. Hierbei erwies sich eine maximale Integrationszeit von 60 s für ClO, 20 s für HCl/O₃ und N₂O⁽¹⁾, sowie 40 s für N₂O⁽²⁾ als ausreichend. Dadurch ergibt sich z.B. im Falle der relativ schwachen Emissionslinie von ClO bei den seit 1995 erzielten Empfängerrauschleistungen von weniger als 800 K eine horizontale Auflösung entlang der Flugbahn von etwa 35 km, im Falle der relativ starken Linien von Ozon und HCl liegt der Wert bei maximal 12 km.

Die für die verschiedenen Moleküle typischen Auflösungen sind am Beispiel der dargestellten Messungen vom 1.3.96 über Spitzbergen in Tabelle 5.1 für die bei den Inversionen verwendeten Höhenstützstellen angegeben. Ebenfalls zu finden sind die gemäß Abschnitt 3.23 berechneten Fehler der durch die Inversion aus den Messungen gewonnenen Mischungsverhältnisse.

5.4 Datenvergleiche

Nachdem im letzten Abschnitt die Anpassung der Inversionsmethode für die verschiedenen SUMAS/ASUR-Meßfrequenzen beschrieben und Beispiele für die Inversionsergebnisse dargestellt wurden, soll nun durch den Vergleich mit unabhängigen Messungen anderer Instrumente eine Validierung der SUMAS/ASUR-Messungen durchgeführt werden. Hierzu sollen nur Messungen herangezogen werden, die möglichst zeitgleich und in nicht zu weiter räumlicher Distanz ihre Daten gewonnen haben.

5.4.1 ClO

SUMAS ClO-Messungen wurden schon früher anderen Messungen gegenübergestellt. So wurde im Frühjahr 1993 ein Unterflug des MLS¹-Instrumentes auf dem amerikanischen UARS²-Satelliten mit dem SUMAS/SMS, dem bei gleicher Frequenz messenden SUMAS/ASUR Vorgänger, durchgeführt. Beim MLS handelt es sich um ein

¹Microwave Limb Sounder

²Upper Atmospheric Research Satellite

Doppelseitenband-Mikrowellenradiometer, daß die ClO-Emissionen bei 204 GHz detektiert und aufgrund seiner Beobachtungsgeometrie durch das schrittweise Abtasten des Atmosphärenrandes („Limb-Sounding,“) eine Höhenauflösung von etwa 3 km erzielt. Der Vergleich ergab eine gute Übereinstimmung der ClO-Messungen der flugzeug- bzw. satellitengestützten Instrumente für einen Schnitt über den Rand des Polarwirbels, wobei das SUMAS/SMS-Instrument zu niedrigeren ClO-Spitzenmischungsverhältnissen bei 20 km Höhe neigte [Crewell, 1993]. Inzwischen stellte sich heraus, daß die verwendeten MLS-Version 3 ClO-Daten einen Skalierungsfehler von +8% aufgrund der Annahme einer falschen Linienstärke aufweisen. Zudem machte sich eine unzureichende Korrektur von HNO₃-Emissionen im 204 GHz ClO-Spektrum mit einem Offset von bis zu 0.2 ppbv bemerkbar [Santee et al., 1996].

Ein Vergleich von im Rahmen dieser Arbeit im Frühjahr 1996 durchgeführten ClO-Messungen des SUMAS/ASUR-Empfängers mit neueren, hinsichtlich der Fehler korrigierten MLS-Version 4 Daten ist in Abbildung 5.6 dargestellt. Hierfür standen nur relativ wenige Daten zur Verfügung, da neben der Position der Messung – MLS erreicht eine horizontale Auflösung von etwa 400 × 400 km² – aufgrund des ausgeprägten ClO-Tagesganges auch ein vergleichbarer Sonnenzenitwinkel gegeben sein muß. Beide Kriterien werden aufgrund des gegebenen Satellitenorbits nur selten erfüllt, zudem sind die MLS-Daten nur für wenige Tage der SUMAS/ASUR-Meßkampagne erhältlich, sodaß letztendlich nur Messungen innerhalb des Polarwirbels bei sehr hohen Werten der potentiellen Vorticity verglichen werden konnten.

Bei dem Vergleich muß zwischen der oberen und der unteren ClO-Schicht unterschieden werden. Oberhalb 30 km ist der MLS-Fehler sehr groß, sodaß eine Übereinstimmung innerhalb der Fehlergrenzen nahezu immer erreicht wird, wenngleich das mittlere MLS-Profil in diesem Bereich teilweise stark vom Verlauf des SUMAS/ASUR-Profils abweicht. Die Qualität der MLS-Daten in diesem Höhenbereich ist also nicht ausreichend, um sinnvoll mit den SUMAS/ASUR-Daten verglichen werden zu können. Zwischen 16 und 24 km ist der MLS-Fehler im allgemeinen kleiner. Für diese Fälle ergibt sich eine gute Übereinstimmung, wenn der Sonnenzenitwinkel beider Messungen vergleichbar ($\pm 1^\circ$) ist und die Messungen deutlich im Inneren des Polarwirbels durchgeführt wurden, sodaß die jeweils leicht unterschiedlichen Positionen und räumlichen Auflösungen nur eine untergeordnete Rolle spielen. Die dabei von beiden Instrumenten bestimmten Spitzenmischungsverhältnisse belaufen sich auf Werte zwischen 1.5 ppbv (1.3.96) und 1.9 ppbv (26.2.96) bei 20 km Höhe. Diese Messungen mit sehr guter Übereinstimmung bei 20 km Höhe sind in Abbildung 5.6 unten links bzw. oben rechts zu finden. Das SUMAS/ASUR-Instrument mißt seine maximalen ClO-Werte bei Situationen großer PV von mehr als $50 \cdot 10^{-6} \text{ Km}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$ auf dem 475 K-Niveau. Am 1.3.1996 wird ein Spitzenwert von 2.0 ± 0.3 ppbv in der 20 km-Schicht festgestellt (Abbildung 5.6, unten rechts). Diese Messung ist aufgrund der vergleichbar hohen potentiellen Vorticity konsistent mit den zuvor erzielten Ergebnissen vom 26.2.96. Die MLS-Messung zeigt jedoch einen wesentlich geringeren Wert. Die eher untypische Form des MLS-Profils

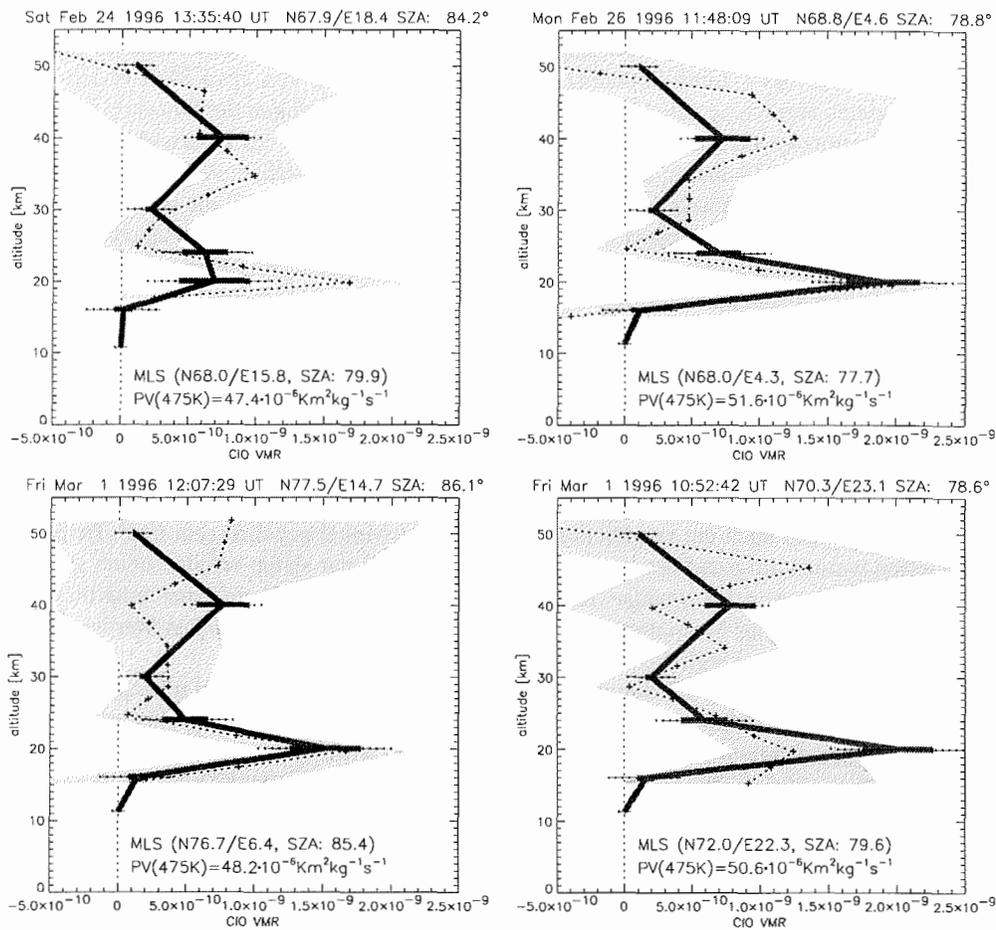


Abbildung 5.6: Vergleich von SUMAS/ASUR CIO-Messungen im Februar/März 1996 (durchgezogen mit Fehlerbalken, wie in Abbildung 5.1) mit Messungen des UARS/MLS Instrumentes (gepunktet mit schattiertem Fehlerbereich). Die Daten und Positionen der Messungen sowie die potentielle Vorticity bei 475K und der Sonnenzenitwinkel sind zusätzlich angegeben.

mit drei CIO-Maxima bei 20, 35 und 45 km, welche auch bei hier nicht dargestellten MLS-Messungen außerhalb des Polarwirbels auftaucht, deutet aber auf Probleme bei der MLS-Messung (Überschwinger) hin. Die Abweichung kann jedoch an dieser Stelle nicht eindeutig erklärt werden. Die Unterschiede zwischen den SUMAS/ASUR- und MLS-Mischungsverhältnissen vom 24.2.96 (Abbildung 5.6, oben links) können hingegen zum Teil auf den größeren Sonnenzenitwinkel bei der SUMAS/ASUR-Messung sowie

insbesondere auf die Lage im Randbereich des Wirbels zurückgeführt werden. MLS sieht hier offenbar auch aufgrund der versetzten Position der Messung und der geringeren räumlichen Auflösung im Gegensatz zum SUMAS/ASUR-Instrument Luftmassen aus dem Wirbelinneren.

Letztendlich ergibt der Vergleich der MLS-Version 4 CIO-Daten mit SUMAS/ASUR-Daten bei 16-24 km innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmende CIO-Mischungsverhältnisse für Messungen deutlich innerhalb des Polarwirbels. Die MLS CIO-Messungen sind oftmals durch eine höhere Variabilität gekennzeichnet. Für die Vergleiche wurden ausschließlich MLS-Profile mit der Qualität „Good“ (Quality_CIO=4) verwendet, die vom Goddard DAAC³ der NASA bereitgestellt werden. Eine Mittelung von Einzelprofilen wurde nicht durchgeführt.

Neben dem Vergleich mit dem MLS-Instrument wurden noch einige andere Daten-Vergleiche durchgeführt. Eine gute Übereinstimmung von SUMAS/ASUR CIO-Messungen außerhalb des polaren Vortex im Februar 1994 mit dem bei gleicher Frequenz messenden ballongestützten SLS-Radiometer wurde in [de Valk et al., 1997] veröffentlicht. Eine ebenfalls gute Übereinstimmung mit Daten des bei 204 GHz messenden bodengestützten Mikrowellenradiometers RAM liefert auch eine im März 1995 im Anflug auf Spitzbergen durchgeführte Messung im äußeren Randbereich des Polarwirbels [Raffalski et al., 1996] [Raffalski, 1997]. Alle diese Vergleiche beruhen auf Messungen mit Heterodyninstrumenten, da CIO in diesem Spektralbereich am leichtesten gemessen werden kann. Das flugzeuggestützte SUMAS/ASUR-Radiometer stellt dabei eines der weltweit empfindlichsten Instrumente dar. Vergleiche mit nicht-Mikrowellen Instrumenten können nicht aufgeführt werden, da bis dato nur wenige solche Messungen im europäischen Teil der Arktis durchgeführt wurden und es bislang zu keiner gleichzeitigen Messung mit dem SUMAS/ASUR-Instrument gekommen ist. Ein im März 1995 koordinierter Vergleich mit einem ballongestützten in-situ Instrument [Woyke et al., 1995] war wegen eines Defekts des in-situ Gerätes leider nicht erfolgreich.

5.4.2 HCl

HCl-Profile können ebenfalls nur von wenigen Instrumenten gemessen werden. Eine gute Übereinstimmung wird wiederum für den 1994 durchgeführten Vergleichsflug mit dem die gleiche Spektrallinie messenden SLS-Radiometer außerhalb des Polarwirbels festgestellt [de Valk et al., 1997].

Desweiteren berichtet [Wohlgemuth, 1997] über einen im Februar 1995 durchgeführten Vergleich mit einem Profil des HALOE⁴-Instruments auf dem UARS-Satelliten. HALOE mißt als Sonnenokkultationsexperiment jeweils ein Profil bei allen etwa 15 vom Satelliten pro Tag gesehenen Sonnenauf- und untergängen mit einer Höhenauflösung von et-

³ Goddard Space Flight Center - Distributed Active Archive Center

⁴ Halogen Occultation Experiment

wa 4.5 km. Die Positionen der Messungen ändern sich mit der Position des Satelliten zu Erde und Sonne und liegen für jeden Tag in einem recht schmalen Breitenband. Eine annähernd globale Abdeckung der Messungen wird je nach Jahreszeit in einem Zeitraum zwischen 2 und 6 Wochen erzielt. Das Meßprinzip beruht auf dem Vergleich der Absorption der durch die Atmosphäre transmittierten solaren Strahlung zur extraterrestrischen solaren Strahlung im Wellenlängenbereich 2.5 bis 10 μm . Eine hohe Empfindlichkeit wird durch die Verwendung einer mit HCl gefüllten Gasfilterkorrelationszelle erreicht, durch die ein Teil der solaren Strahlung geführt wird. Letztendlich kann aus der Differenz der beiden Teilstrahlen auf das HCl-Mischungsverhältnis in der Atmosphäre geschlossen werden [Russell *et al.*, 1993]. Der Vergleich von [Wohlgemuth *et al.*, 1995] ergibt eine weitgehend gute Übereinstimmung für eine Situation ungestörter Chemie außerhalb des Polarwirbels. Im Höhenbereich um 30 km wird jedoch ein signifikant höheres HCl-Mischungsverhältnis der SUMAS/ASUR-Messung im Vergleich zu den räumlich etwas entfernten HALOE-Daten festgestellt.

Dieser Sachverhalt wird durch den in Abbildung 5.7 (linkes Bild) dargestellten Vergleich mit HALOE im März 1996 für die in dieser Arbeit behandelte Meßkampagne erhärtet. Gute Übereinstimmung innerhalb der Fehlergrenzen wird hier im Bereich 15-25 km sowie oberhalb etwa 45 km erzielt, dazwischen kommt es zu einer leicht positiven Abweichung der SUMAS/ASUR HCl-Mischungsverhältnissen von den HALOE-Daten um ca. 20%. Für den Vergleich wurden vom Goddard-DAAC der NASA bereitgestellte HALOE-Daten der Version 18 vom auf die SUMAS/ASUR-Messung folgenden Tag verwendet. Aufgrund einer relativ stabilen Situation außerhalb des Polarwirbels spielt der Zeitversatz zwischen den Messungen allerdings keine große Rolle. HALOE HCl-Messungen wurden für die Validation des Instrumentes mit einer Anzahl koordinierter Messungen verschiedener ballongestützter Instrumente sowie mit dem ATMOS-Instrument auf dem Space Shuttle verglichen. Hierbei wurden für HALOE etwa 10-20% niedrigere Mischungsverhältnisse über den Höhenbereich der Stratosphäre festgestellt [Russell *et al.*, 1996], was den systematischen Unterschied zu den SUMAS/ASUR-Messungen zumindest teilweise erklärt.

Über den letzten im Februar 1997 am Rand des Polarwirbels durchgeführten Datenvergleich zwischen SUMAS/ASUR und einem ballongestützten FTIR-Sonnenokkultationsexperiment wird in [Bremer, 1997] berichtet, der exakt den in dieser Arbeit entwickelten Auswertalgorithmus für HCl verwendet. Hierbei ergibt sich eine gute Übereinstimmung bis zur Gipfelhöhe des Ballons bei etwa 30 km. Ein Einbruch des HCl-Mischungsverhältnisses zwischen 19 und 22 km wird vom ASUR-Instrument allerdings nicht gesehen. Die Ursache hierfür kann sowohl die schlechtere Höhenauflösung des flugzeuggestützten SUMAS/ASUR-Radiometers als auch die kritische Meßposition am Rande des polaren Vortex sein. Für eine genauere Analyse sei auf [Bremer, 1997] verwiesen.

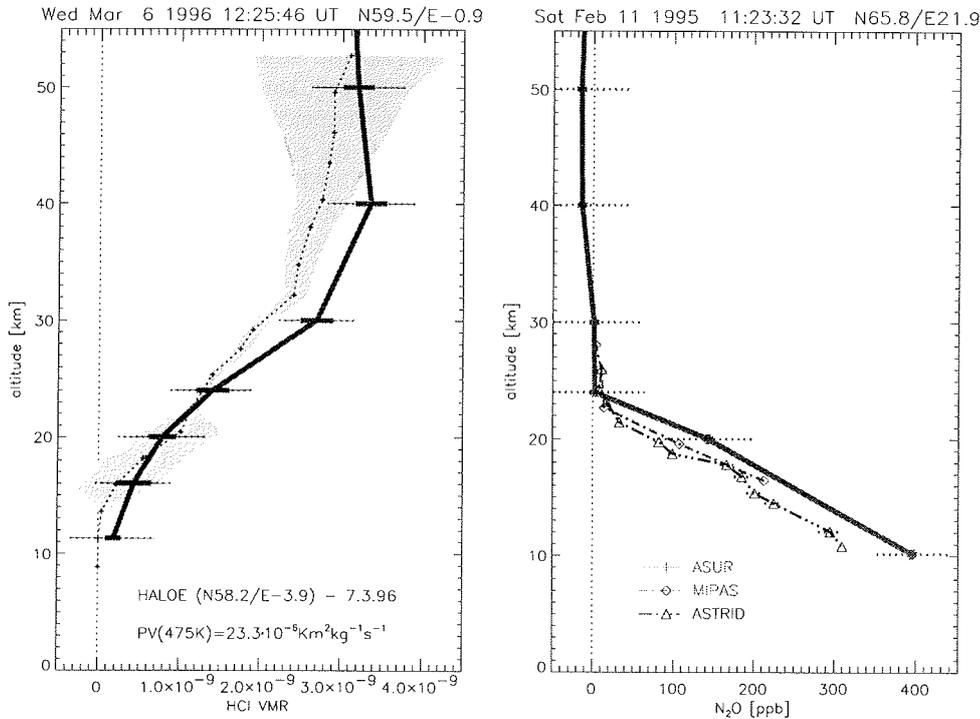


Abbildung 5.7: Links: SUMAS/ASUR HCl-Messung vom 6.3.1996 außerhalb des Polarwirbels im Vergleich mit einer Messung des HALOE-Instrumentes auf dem UARS-Satelliten vom 7.3.96. (SUMAS/ASUR: Durchgezogene Linien mit Fehlerbalken, HALOE: gepunktete Linie mit schattiertem 1σ -Fehlerbereich). Rechts: SUMAS/ASUR- N_2O anhand einer Messung der 627.752 GHz-Linie vom 11.2.1995 im Polarwirbel im Vergleich zu Messungen zweier ballongestützter Instrumente vom selben Tag, MIPAS-B und ASTRID.

5.4.3 N_2O

SUMAS/ASUR N_2O -Messungen können nur in zwei Fällen mit Daten anderer Instrumente verglichen werden. Der erste, eine gute Übereinstimmung für eine Situation außerhalb des polaren Vortex ergebende Vergleich wurde von [de Valk et al., 1997] durchgeführt. Das Vergleichsinstrument war wieder das ballongestützte SLS-Radiometer. Einen weiteren Vergleich mit ballongestützten Instrumenten, dem MIPAS-B Michelson Interferometer [Oelhaf et al., 1995] sowie dem ASTRID-Kryosampler [Engel et al., 1995] wurde bereits in [Urban et al., 1996] veröffentlicht und ist in Abbildung 5.7 dargestellt. Die Messungen wurden am 11.2.95 über Nordskandinavien

innerhalb des polaren Vortex durchgeführt, wobei von allen drei Instrumenten ein starkes Absinken der Luft im Wirbel festgestellt wurde. Die SUMAS/ASUR-Messung stimmt innerhalb der Fehlergrenzen im Höhenbereich 20-30 km mit den Vergleichsmessungen überein, oberhalb von 30 km liegen keine Vergleichsdaten vor. Unterhalb von 20 km neigt die SUMAS/ASUR-Messung jedoch zu einer Überschätzung des N_2O -Mischungsverhältnisses. Auf diesen für die SUMAS/ASUR-Messungen der 627.752 GHz-Linie beobachteten Effekt wurde bereits in Abschnitt 5.2 hingewiesen. Es handelt sich wahrscheinlich um einen systematischen Effekt aufgrund der nicht mit genügender Genauigkeit bekannten Linienverbreiterungsparameter sowohl der N_2O - als auch der überlagerten $^{18}O^{16}O$ -Linie. Weitere Vergleiche mit N_2O -Daten des ILAS-Instruments auf dem japanischen ADEOS-Satelliten - einem in solarer Okkultation messenden Infrarotspektrometer- sind in [Bremer, 1997] zu finden und zeigen den gleichen Trend einer N_2O -Überschätzung in den SUMAS/ASUR-Ergebnissen. Vergleichsmessungen für die seit 1996 vom SUMAS/ASUR-System gemessene N_2O -Linie bei 652.833 GHz, deren Inversion generell kleinere N_2O -Mischungsverhältnisse liefert und somit eine bessere Übereinstimmung mit Vergleichsmessungen erwarten lassen, liegen leider noch nicht vor.

5.4.4 Ozon

Für eine Validierung der SUMAS/ASUR-Ozonmessungen stehen einige Vergleichsmessungen zur Verfügung.

Im unteren Höhenbereich bis maximal 30 km eignen sich insbesondere Ozonsonden aufgrund ihrer hohen Genauigkeit und guten Höhengauflösung für einen Datenvergleich. Abbildung 5.8 zeigt nun den Vergleich der SUMAS/ASUR-Ozonmessungen anhand der 625.372 GHz-Ozonlinie mit Ozonsondendaten⁵ für verschiedene Situationen innerhalb, am Rande, sowie außerhalb des Polarwirbels im Zeitraum 22.2.1996 bis 6.3.1996. Die zeitlichen und räumlichen Unterschiede zwischen den ausgewählten SUMAS/ASUR- und Ozonsondenmessungen sind hinreichend klein, um allzu große Ozondifferenzen aufgrund von Transporteffekten ausschließen zu können. Hierbei wird generell eine sehr gute Übereinstimmung im Rahmen der SUMAS/ASUR-Meßfehler festgestellt. Aufgrund der geringeren Höhengauflösung lassen sich die von den Sonden beobachteten feinen vertikalen Strukturen natürlich nicht vom SUMAS/ASUR-Gerät auflösen.

Oberhalb 30 km stehen weniger Vergleichsmessungen zur Verfügung. Dennoch verifizieren die in Abbildung 5.8 dargestellten Messungen des bodengestützten Mikrowellenradiometers RAM sowie des satellitengestützten UARS/HALOE-Instrumentes die SUMAS/ASUR-Ozonmessungen auch in diesem Höhenbereich innerhalb der Fehlergrenzen. Die zur Verfügung stehende Messung des RAM-Radiometers wurde dabei erst zwei Tage nach dem Meßflug nach Spitzbergen durchgeführt. Die täglich durchgeführten Oz-

⁵ Die Ozonsondendaten wurden der Datenbank des Norwegian Institute for Air Research (NILU) entnommen.

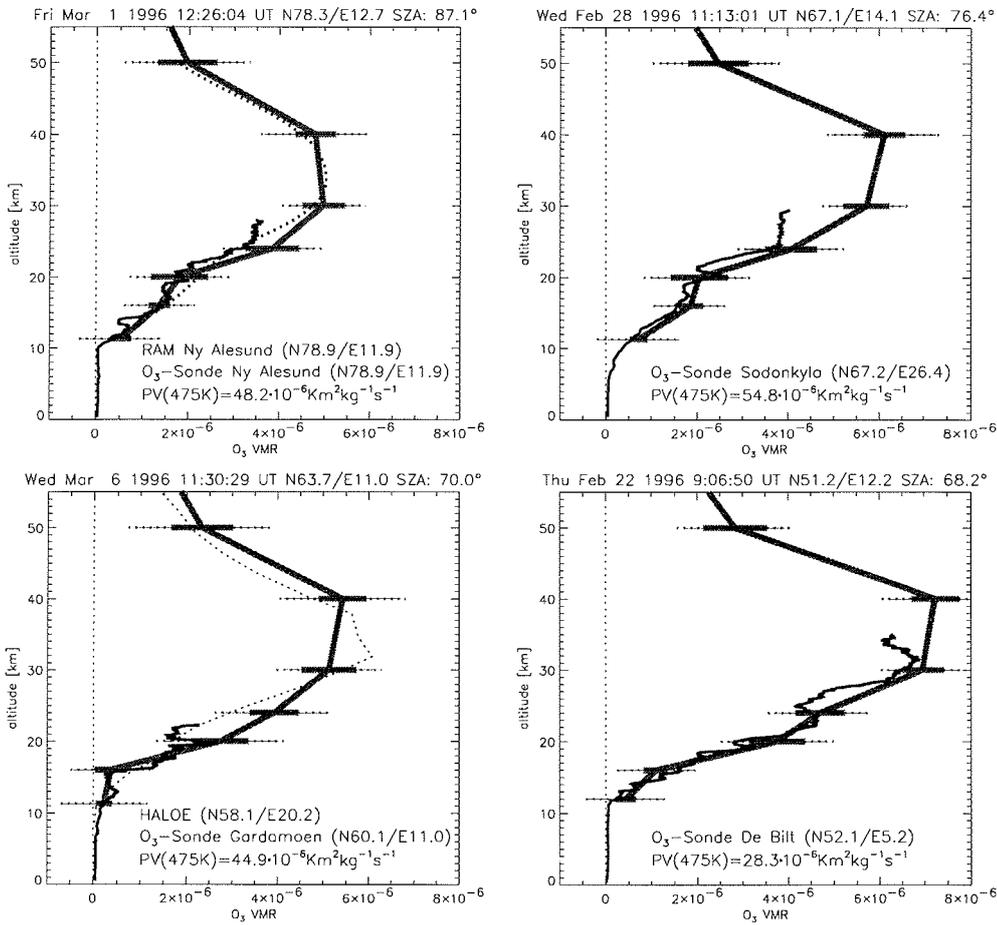


Abbildung 5.8: Vergleich der SUMAS/ASUR Ozonmessungen (durchgezogene Linien mit Fehlerbalken) mit hochaufgelösten Ozonsondendaten für unterschiedliche Meßsituationen. Oben links: Messung innerhalb des Polarwirbels über Spitzbergen vom 1.3.1996. Zusätzlich zur Ozonsondenmessung vom selben Tag ist eine Messung des bodengestützten Mikrowellenradiometers RAM vom 3.3.1996 eingezeichnet (gepunktet). Oben rechts: Messung vom 28.2.1996 über Nordskandinavien bei einem sehr hohen Wert der potentiellen Vorticity im Vergleich mit einer in Sodankyla (Finnland) gestarteten Ozonsonde. Unten links: Messung im Bereich des Vortexrandes über Norwegen am 6.3.1997. Neben der Messung einer Gardamoen-Ozonsonde ist ein HALOE-Ozonprofil vom 7.3.96 dargestellt (gepunktete Linie). Unten rechts: Messung in mittleren Breiten außerhalb des Polarwirbels im Vergleich zu einer DeBilt-Ozonsonde.

onsondenmessungen zeigen jedoch keine starken Variationen über diesen 2-Tages Zeitraum, sodaß auch oberhalb 30 km kaum von drastischen Änderungen der Ozonkonzentration ausgegangen werden muß.

5.5 Zusammenfassung: Datenanalyse

In diesem Kapitel über die Datenanalyse der SUMAS/ASUR-Messungen wurden zunächst die in der Praxis für die Vorbereitung der Rohdaten und die Anpassung der angewendeten Inversionsverfahren notwendigen Schritte beschrieben. Dabei wurden für die gemessenen Spektrallinien von ClO, HCl, O₃ und N₂O die jeweiligen Besonderheiten hervorgehoben und die Fehler der Messungen sowie die Höhenauflösungen anhand des Beispiels der atmosphärischen Messungen über Spitzbergen vom 1.3.1996 berechnet. Desweiteren wurde der Einfluß der zur Stabilisierung der Inversionsverfahren verwendeten „A priori“-Profile in Abhängigkeit von der Höhe abgeschätzt.

Im zweiten Teil wurde dann eine Validierung der SUMAS/ASUR-Messungen anhand von Datenvergleichen mit unabhängigen Messungen durchgeführt. Während für ClO und Ozon gute Übereinstimmungen mit den Messungen anderer Instrumente (MLS, HALOE, RAM, O₃-Sonden) gefunden wurden, stellten sich leichte positive systematische Differenzen für HCl im Höhenbereich 30-40 km im Vergleich mit HALOE sowie für N₂O (627.751 GHz) bei Höhen unterhalb 20 km im Vergleich mit MIPAS und ASTRID heraus. Für diese Moleküle existieren allerdings wie auch für ClO in der oberen Stratosphäre nur wenige Vergleichsmessungen, sodaß ein systematischer Fehler – möglicherweise aufgrund von Fehlern der Linienverbreiterungsparameter – nur vermutet werden kann. Für die erstmals 1996 bei 652.833 GHz gemessene N₂O-Linie, deren Messungen generell kleinere N₂O-Mischungsverhältnisse im Bereich der unteren Stratosphäre im Vergleich zu der bei 627.751 GHz gemessenen Linie liefern, liegen leider noch keine direkten Vergleichsmessungen vor.

Kapitel 6

SUMAS/ASUR: Meßkampagnen und Ergebnisse

Auf europäischer Ebene wurde im Winter 1991/92 die EASOE¹-Kampagne und in ihrer Nachfolge die in 3 Phasen durchgeführte SESAME²-Kampagne der Jahre 1994 und 1995 organisiert und finanziert, welche insbesondere die Erforschung der Ursachen des Ozonabbaus in der winterlichen Stratosphäre der Nordhemisphäre sowie die Austauschprozesse mit mittleren Breiten zum Ziel hatten. Einen Beitrag im Rahmen dieser Kampagnen lieferte auch das flugzeuggestützte SUMAS-Experiment, welches vom *Institut für Umweltphysik der Universität Bremen* zunächst hauptsächlich zur Messung des für den Ozonabbau in der arktischen Stratosphäre hauptverantwortlichen Chlornradikals ClO sowie des Chlorreservoirs HCl eingesetzt wurde.

Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt nun auf den in den nachfolgenden Jahren 1996-1997 mit dem SUMAS/ASUR-Radiometer durchgeführten Meßkampagnen. Bevor jedoch eine Darstellung und Interpretation ausgewählter Messungen und erzielter Ergebnisse erfolgt, wird zunächst eine kurze Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse der letzten Meßkampagnen gegeben. Tabelle 6.1 gibt einen Überblick über die Zeiträume der Meßkampagnen, die jeweils erzielte Systemempfindlichkeit sowie die gemessenen Moleküle. Als Basisflughafen für die Meßkampagnen diente aufgrund seiner geographischen Lage bei allen Kampagnen Kiruna in Nordschweden.

6.1 Ergebnisse vorangegangener Kampagnen

Während der EASOE-Kampagne im Winter 1991-92 wurden zum ersten Mal ClO-Profile mit dem SUMAS/SMS, einem auf die Temperatur flüssigen Stickstoffs gekühl-

¹ European Arctic Stratospheric Ozone Experiment

² Second European Stratospheric Arctic and Midlatitude Experiment

Zeitraum	Kampagne	Sensor	# Fl.	Band [GHz]	T _{sys} [K]	Moleküle
1991/92 Dez.-März	EASOE	SUMAS	4	625-650	10000	HCl, O ₃
		SUMAS/SMS	8	650	4000	ClO
1993 Februar	MLS/UARS Validation	SUMAS	1	625-650	10000	HCl, O ₃
		SUMAS/SMS	6	650	4000	ClO
1994 Februar	SESAME I	SUMAS/ASUR	4	625-650	1500-2200	ClO, HCl, N ₂ O, O ₃
			1	663/687	1900-2300	ClO, O ₃
1995 Feb.-März	SESAME III	SUMAS/ASUR	16	625-650	700-900	ClO, HCl, N ₂ O, O ₃
		SUMAS/RAL	3	490-510	800-1000	ClO, N ₂ O, O ₃ , HNO ₃
1996 Feb.-März	GOME/ERS-2 Validation	SUMAS/ASUR	11	624-654	550-1000	ClO, HCl, N ₂ O, O ₃ , HO ₂
1997 Februar	ILAS/ADEOS Validation	SUMAS/ASUR	5	624-654	450-650	ClO, HCl, N ₂ O, O ₃ , HO ₂
		SUMAS/RAL	5	490-510	650-950	ClO, N ₂ O, O ₃ , HNO ₃ H ₂ O, CH ₃ Cl,

Tabelle 6.1: Meßkampagnen mit Submillimetersensoren auf dem Forschungsflugzeug FALCON im Zeitraum 1991-1997.

ten Schottky-Dioden-Empfänger, gemessen. Aufgrund der geringen Empfindlichkeit und schlechten Stabilität des Instruments konnte nur jeweils ein ClO-Profil pro Flug bestimmt werden. HCl- und Ozonmessungen wurden mit dem ungekühlten SUMAS-Radiometer durchgeführt. Die Ergebnisse der Messungen sowie die für diese Kampagne entwickelten Auswerteverfahren sind in [Crewell *et al.*, 1994], [Wehr *et al.*, 1994] und [Wehr *et al.*, 1995] beschrieben. Hierbei wurde eine deutlich Abnahme des in der unteren Stratosphäre gemessenen aktiven Chlors (ClO) im Zeitraum Februar bis März 1992 gemessen. Gleichzeitig konnte keine signifikante Zunahme an HCl festgestellt werden. Somit unterstützten die Messungen die Annahme, daß in der Arktis, im Gegensatz zur Antarktis, zunächst die Konversion in ClONO₂ der bevorzugte Weg der Rückführung des aktiven Chlors in die Reservoirstoffe ist.

Die **UARS-Unterflug** Kampagne im Februar 1993 stand im Zeichen eines Vergleichs der gemessenen ClO-Profile mit dem satellitengestützten UARS/MLS-Instrument. Die dabei erzielte gute Übereinstimmung ist in [Crewell *et al.*, 1995] detailliert beschrieben (siehe auch 5.4.1). Aufgrund einer verbesserten Stabilität des SUMAS/SMS-Empfängers konnten erstmals ClO-Schnitte über den Rand des Polarwirbels mit einer im Vergleich zum Satelliteninstrument relativ hohen horizontalen Auflösung von etwa 200 km bestimmt werden, wobei im Inneren des Wirbels wie schon 1992 eine starke Chloraktivierung festgestellt wurde.

Für die **SESAME I-Kampagne** 1994 wurde das zuvor ungekühlte SUMAS-Radiometer durch Adaption eines empfindlichen, mit flüssigem Helium gekühlten SIS-Mischers von *SRON, Groningen*, erheblich verbessert [Mees *et al.*, 1995]. Das in SUMAS/ASUR umbenannte Empfängersystem ermöglichte erstmals Profilmessungen der Moleküle ClO, HCl, N₂O und Ozon während eines einzelnen Fluges. Messungen der 627.752 GHz N₂O-Linie sowie einer ClO-Linie bei 686 GHz wurden zum ersten Mal durchgeführt. Aufgrund einer ungünstigen meteorologischen Situation war der Polarwirbel allerdings während der nur kurzen Meßkampagne außerhalb der Reichweite des Forschungsflugzeugs. Ein Vergleich mit einem im selben Spektralbereich arbeitenden ballongestützten Radiometer des JPL³ ergab eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse für alle gemessenen Moleküle. Die für ungestörte Chemie typischen Messungen wurden zudem von einem 3-dimensionalen chemischen Transportmodell (SLIMCAT, [Chipperfield *et al.*, 1997]) gut reproduziert [de Valk *et al.*, 1997].

Eine Optimierung des SUMAS/ASUR-Systems durch die Eliminierung von Fehlanpassungen in der Quasioptik, der Verwendung empfindlicherer Dioden sowie der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Anpassung eines breitbandigen, hochauflösenden Akustooptischen Spektrometers brachte für die **SESAME III-Kampagne** im Februar und März 1995 eine weitere Verbesserung der Systemempfindlichkeit. Der hierdurch mögliche Test der 3-dimensionalen chemischen Transportmodelle SLIMCAT und REPROBUS [Lefevre *et al.*, 1994] anhand eines räumlich hochaufgelöst (≤ 30 km) gemessenen ClO-Schnitts über den Rand des Polarwirbels ergab eine gute Übereinstimmung für SLIMCAT, nicht jedoch für REPROBUS, welches eine etwas zu geringe Chloraktivierung modellierte [Wohlgemuth *et al.*, 1996]. Desweiteren konnten mithilfe eines neuentwickelten gegenüber Ausreißern in den Spektren robusten Inversionsverfahrens aus den räumlich hochaufgelösten Daten kleinräumige Luftmassen leicht erhöhter ClO-Konzentrationen deutlich außerhalb des polaren Vortex festgestellt werden [Wohlgemuth, 1997], die von den schlechter auflösenden Modellen nicht simuliert werden konnten. Diese Messungen lieferten einen weiteren Hinweis für das Ablufen von Austauschprozessen polarer Luft mit der Luft mittlerer Breiten über die Ablösung von sogenannten Filamenten vom Wirbelrand.

Während der SESAME III-Kampagne wurde zum ersten Mal ein vom englischen *Rutherford Appleton Laboratory (RAL)* entwickeltes Empfänger-Frontend zusammen mit dem SUMAS-Backend eingesetzt. Mit diesem bei Frequenzen um 500 GHz messenden SIS-Empfänger konnten neben den ebenfalls gemessenen Molekülen ClO, O₃ und N₂O auch HNO₃-Profile bestimmt werden [Siddans *et al.*, 1995].

Eine zusammenfassende Darstellung der Ergebnisse aller vier vorausgegangenen Februar-Kampagnen ergab schließlich einen nahezu linearen Zusammenhang zwischen der potentiellen Vorticity bei 475 K und den ClO-Säulendichten [de Valk *et al.*, 1995]. Sowohl die experimentellen Unsicherheiten als auch die meteorologischen Variabilitäten sind aller-

³Jet Propulsion Laboratory, Pasadena, USA

dings zu groß, um aus diesen Messungen die erwartete Zunahme des aktiven Chlors in der Stratosphäre mit den Jahren bestätigen zu können.

6.2 Die SUMAS/ASUR Meßkampagne 1996

Bevor mit der Darstellung der Ergebnisse der im Zeitraum 22.2.-6.3.1996 durchgeführten Meßkampagne begonnen wird, sollen noch einmal die Vor- und Nachteile flugzeuggestützter Fernerkundungsmessungen gegeneinander abgewogen und auf diese Weise verdeutlicht werden:

- ⊕ Zunächst einmal sind Fernerkundungssensoren auf hochfliegenden Forschungsflugzeugen nicht durch die Absorption der Troposphäre beeinflusst und somit wesentlich empfindlicher als bodengestützte Instrumente, da das ungestörte stratosphärische Signal detektiert werden kann. Im Falle des SUMAS/ASUR-Radiometers werden Messungen kleiner Linien, z.B. von ClO, in einer Qualität möglich, die kein bodengestütztes Mikrowellenradiometer zu erreichen vermag. Insbesondere ClO besitzt gerade im Submillimeterbereich besonders starke Spektrallinien, wo die Troposphäre praktisch undurchsichtig ist. Andere Spektrallinien wie z.B. die von HCl sind außer bei Submillimeterwellenlängen nur im Infraroten zu finden, wo aufgrund der starken Dopplerverbreiterung der Linien vom Boden aus lediglich Säulenbestimmungen möglich sind.
- ⊕ Flugzeuggestützte Messungen besitzen gegenüber satellitengetragenen Sensoren den Vorteil einer besseren horizontalen Auflösung, sodaß Untersuchungen kleinräumiger Strukturen z.B. im Randbereich des Polarwirbels möglich werden.
- ⊕ Eine gleichzeitig hohe zeitliche und räumliche Auflösung erlaubt zudem die Bestimmung von Konzentrationsänderungen der gemessenen Spurengase aufgrund von photolyseratenabhängigen Reaktionen, wenn bei einem Meßflug die Tag-Nacht-Grenze überflogen wird.
- ⊖ Demgegenüber können aufgrund der hohen Kosten Meßflüge nur an wenigen Tagen im Jahr durchgeführt werden, sodaß eine Bestimmung etwa von Jahresgängen – typische Ergebnisse boden- und satellitengestützter Instrumente – nicht in Frage kommen kann. Im Gegensatz zu der globalen Abdeckung satellitengestützter Messungen werden nur Stichproben zu bestimmten Zeiten und Orten genommen, von deren Wahl der Erfolg eines Meßfluges entscheidend abhängt.
- ⊖ Satelliten- oder ballongestützte Fernerkundungsinstrumente können, wenn sie entsprechend konstruiert sind, aufgrund ihrer Beobachtungsgeometrie eine bessere

vertikale Auflösung erreichen. Ballongestützte in-Situ Instrumente erreichen oft eine größere Meßgenauigkeit. Die bei großen Nutzlasten sehr teuren ballongestützten Messungen sind allerdings aufgrund des Driftens mit der zu messenden Luftmasse in noch extremeren Maße Stichprobenmessungen, die sich hauptsächlich für die Bestimmung von Bilanzen der chemischen Familien (z.B. der Chlor- oder Stickstofffamilie) eignen.

Letztendlich ergänzen sich die auf unterschiedliche Weise erzielten Meßergebnisse für eine umfassende Analyse der Ozonabbaumechanismen in der arktischen Stratosphäre. Besondere Aufgaben der SUMAS/ASUR-Messungen sind dabei

1. die Messung der Chlorverbindungen ClO und HCl zur **Bestimmung der Chloraktivierung** im polaren Wirbel (siehe Abschnitt 6.2.4),
2. die **Untersuchung kleinräumiger Strukturen** innerhalb, am Rand und außerhalb des Polarwirbels, anhand der Messungen von ClO, HCl, N₂O und Ozon (Abschnitte 6.2.5 und 6.2.6),
3. die **Bestimmung von chemisch bedingten Verlusten** der gemessenen Spurengasmischungsverhältnisse im Polarwirbel im Vergleich zu den außerhalb des Wirbels gemessenen Werten (siehe 6.2.7),
4. die **Untersuchung zeitabhängiger Reaktionsmechanismen** wie z.B. des Tagesgangs von ClO (Abschnitt 6.5).

Hieraus ergibt sich somit eine Gliederung für die Darstellung der Meßergebnisse. Parallel dazu ist das SUMAS/ASUR-System insbesondere für die Überprüfung und **Validierung von chemischen Modellen** sowie von Satellitenmessungen geeignet.

6.2.1 Meteorologische Situation im Winter 1995/96

Der winterliche arktische Polarwirbel ist im allgemeinen dynamisch wesentlich aktiver als sein Gegenüber in der Antarktis. Dies führt zu einer großen Variabilität der meteorologischen Rahmenbedingungen für chemisch bedingten Ozonverlust und dynamische Umverteilung im Vergleich der Jahre.

Der Winter 1995/96 war dabei der kälteste in der Geschichte der 30-jährigen Analysen der freien Universität Berlin mit ungewöhnlich tiefen Temperaturen über einen sehr langen Zeitraum hinweg. So war die Entstehung von PSC-Typ I in der unteren Stratosphäre des arktischen polaren Vortex durchgehend von Dezember 1995 bis Anfang März 1996 über eine ausgedehnte Fläche und einen großen vertikalen Bereich möglich [EU, 1997 (a)],

eine Grundvoraussetzung für eine starke Chloraktivierung und den daraus resultierenden Ozonabbau.

6.2.2 Zeitraum der Kampagne

Die Meßkampagne mit dem SUMAS/ASUR-System fiel nun in den Zeitraum zwischen dem 22.2.1996 und dem 6.3.1996, in der der polare Vortex und auch das Kältezentrum recht stabil über dem Nordatlantik und Skandinavien lagen. Das Ausmaß der Chloraktivierung innerhalb und am Rand des Wirbels konnte im Rahmen einer Reihe von Flügen bestimmt werden. Tabelle 6.2 gibt einen Überblick über die 11 durchgeführten Meßflüge.

SUMAS / ASUR Campaign with the Falcon Aircraft 1996

Flight	Date	Start	Duration	Flight route	Special aims
01	22.02.	09:16	3:30 h	Oberpfaffenhofen - Trondheim - Kiruna	GOME, HO ₂ , Vortex edge
02	24.02.	13:44	1:35 h	West - East over Kiruna	inside Vortex edge
03	25.02.	14:02	4:28 h	Kiruna - N68/W14 - Kiruna	Day - Night, Vortex
04	26.02.	11:48	3:45 h	Kiruna - N68/W8 - Kiruna	GOME, BrO, HO ₂ , Vortex
05	28.02.	11:44	3:53 h	Kiruna - Trondheim - Aalborg - Kiruna	Vortex edge, GOME, HO ₂
06	01.03.	11:23	3:34 h	Kiruna - Alta - Ny Aalesund - Kiruna	BrO, GOME, Vortex
07	02.03.	05:08	2:57 h	Kiruna - N70/E0 - N70/E24 - Kiruna	Night - Day, Vortex
08	04.03.	11:38	2:16 h	Kiruna - Trondheim - N68/E10 - Kiruna	HO ₂ , Vortex
09	05.03.	12:03	1:56 h	Kiruna - Alta - Longyearbyen	GOME, RAM, Vortex
10	05.03.	15:40	2:25 h	Longyearbyen - Ny Aalesund - Kiruna	GOME, Day-Night, Vortex
11	06.03.	11:46	3:36 h	Kiruna - Trondheim - Orkney - Amsterdam - Oberpfaffenhofen	Vortex edge, Midlatitudes

Tabelle 6.2: Übersicht über die im Februar und März 1996 mit dem SUMAS/ASUR-System durchgeführten Meßflüge.

Die Transferflüge Nr. 1 und 11 sowie Flug 5 führten dabei über den Rand des Polarwirbels. Insgesamt drei Meßflüge (Nr. 3, 7, 10) wurden für die Erkundung des CIO-Tagesganges durchgeführt. Ein weiteres Hauptanliegen der 1996er-Kampagne war die – im Rahmen dieser Arbeit nicht vertiefte – Detektion von sehr kleinen Linien, z.B. von HO₂ und auch BrO. Für erste Ergebnisse bzgl. HO₂ sei an dieser Stelle auf [Urban *et al.*, 1996] verwiesen. Die Messungen wurden nach Möglichkeit mit dem GOME⁴-Instrument auf dem

⁴ Global Ozone Monitoring Experiment

europäischen ERS-2 Satelliten, einem im sichtbaren und UV-Bereich arbeitenden Sensor, koordiniert. Die Validation von GOME ist allerdings ebenfalls nicht Thema dieser Arbeit und GOME CIO-Daten liegen z. Zt. auch noch nicht vor. Vergleiche mit GOME-Daten werden daher nicht präsentiert.

6.2.3 Vergleich mit 3D-Modell

Parallel zu der Darstellung der SUMAS/ASUR-Meßergebnisse soll in den folgenden Abschnitten ein Vergleich mit den Ergebnissen des dreidimensionalen chemischen Transportmodells SLIMCAT der *Universität Cambridge* durchgeführt werden. Neben der Überprüfung und Validierung des Modells ist dies wichtig, um die zu bestimmten Zeiten an verschiedenen Orten durchgeführten Messungen in einen größeren Zusammenhang einzuordnen und somit im Rahmen des 3D-Modells einen späteren indirekten Vergleich mit anderen, nicht zeitgleichen Messungen zu ermöglichen (siehe z.B. [Chipperfield *et al.*, 1997] für die 95er-Kampagne).

Dreidimensionale chemische Transportmodelle eignen sich besonders gut für die Analyse der chemischen Vorgänge in der Stratosphäre, da die benötigten Temperatur- und Windfelder meteorologischen Analysen entnommen werden, welche auf Radiosonden- und Satellitendaten basieren. Dies erlaubt eine realistische Unterscheidung zwischen dynamischen und chemischen Effekten. Das SLIMCAT-Modell verwendet hierzu die Daten des „UK Meteorological Office“ (UKMO). Modellläufe für die Arktis werden gegen Ende November, also vor Beginn des jeweiligen Winters, initialisiert. Als Anfangskonzentrationen für die zahlreichen Spurengase werden wenn möglich Satellitendaten (z.B. UARS) oder ansonsten die Ergebnisse zweidimensionaler klimatologischer Modelle für die entsprechende Jahreszeit herangezogen. Das SLIMCAT-Modell verwendet bei den in dieser Arbeit dargestellten Modellläufen 11 Isentropenflächen zwischen den potentiellen Temperaturen 350 und 2300 K als vertikale Koordinaten. Dies entspricht in etwa dem Höhenbereich zwischen 12 und 50 km. Die horizontale Auflösung beträgt 2.5° Breiten- und 5.625° Längengrade. Das detaillierte chemische Modul des Modells umfaßt die üblichen chemischen Familien (O_x , NO_y , Cl_y , Br_y , HO_x) sowie langlebige Spurengase wie N_2O und CH_4 . Desweiteren ist eine Behandlung der heterogenen Reaktionen auf Sulfataerosolen und PSC's implementiert. Eine ausführlichere Beschreibung des SLIMCAT-Modells ist in [Chipperfield *et al.*, 1996] zu finden.

6.2.4 Chloraktivierung in der Arktis

Zunächst soll die vom SUMAS/ASUR-Radiometer festgestellte Chloraktivierung in der unteren arktischen Stratosphäre dargestellt werden. Einige während der Kampagne gemessene CIO-Profile mit Spitzenmischungsverhältnissen von bis zu 2.0 ppbv in

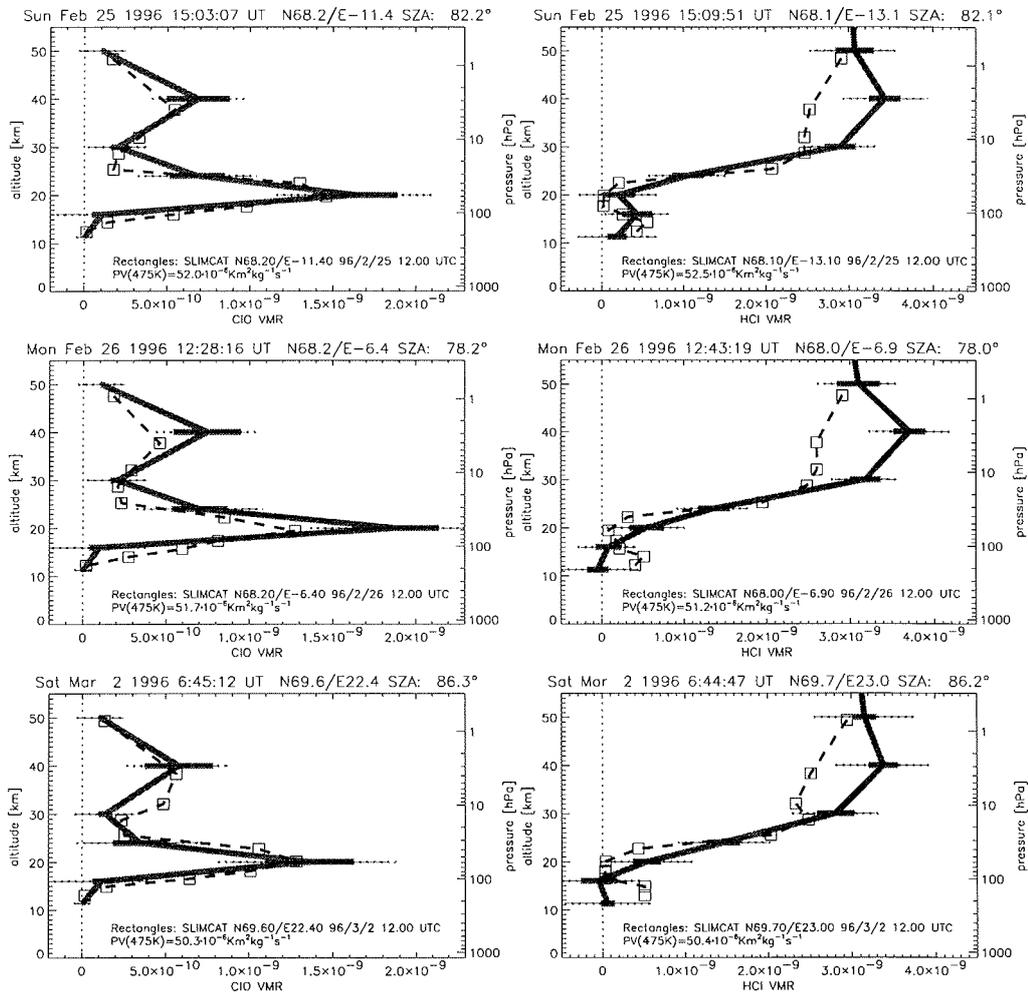


Abbildung 6.1: Typische SUMAS/ASUR CIO- und HCl-Messungen im arktischen polaren Wirbel 1996. Den CIO-Messungen auf der linken Seite ist jeweils rechts eine in nächster Nähe durchgeführte Messung des Reservoirgases HCl gegenübergestellt. Neben den Meßergebnissen (durchgezogen mit Fehlerbalken) sind zusätzlich Ergebnisse des SLIMCAT-3D-Modells für den Tag und die Position der Messungen dargestellt (gestrichelt mit Kästen). Oben: Messung vom 25.2.1996, Mitte: Messung vom 26.2.1996, unten: Messung vom 2.3.1996.

20 km Höhe wurden bereits in Abbildung 5.6 beim Vergleich mit Messungen des MLS-Instrumentes gezeigt. ClO-Mischungsverhältnisse in dieser Größenordnung bedeuten praktisch eine komplette Aktivierung des anorganischen Chlors in der unteren Stratosphäre, wie Modellrechnungen ergeben [Shindell, 1995]. Den ClO-Profilen werden nun zusätzlich Messungen des Reservoirgases HCl gegenübergestellt. Abbildung 6.1 stellt drei weitere typische ClO-Messungen (links) sowie die entsprechenden HCl-Profile (rechts) aus dem Polarwirbel vor. Hierbei ist wiederum die deutliche Chloraktivierung zu erkennen, die sich zwischen 1.3 und 1.9 ppbv bewegt, während zur gleichen Zeit niedrige HCl-Werte von weniger als ca. 0.5 ppbv im Höhenbereich 16-20 km festgestellt werden.

Neben den ASUR-Messungen sind zusätzlich die Ergebnisse des SLIMCAT-Modells für den jeweiligen Tag (12:00 UT) und die Position der Messung angegeben. Wie bereits für den SESAME-Winter 1994/95 festgestellt wurde [Wohlgemuth et al., 1996], wird die Chloraktivierung aufgrund heterogener chemischer Prozesse bei 20 km vom Modell generell recht gut wiedergegeben, wengleich der Spitzenwert der Chloraktivierung vom 26.2.1996 (Abbildung 6.1, Mitte links) unterschätzt wird. Für diesen Meßflug ermittelt SLIMCAT um ca. 0.6 ppbv zu niedrige ClO-Spitzenwerte, wobei die SUMAS/ASUR-Messung zusätzlich durch eine Messung des MLS-Instrumentes (Abbildung 5.6) bestätigt wird. Die Übereinstimmung bei den beiden anderen Beispielen ist hingegen bemerkenswert, wenn man bedenkt, daß die Initialisierung des Modells bereits ca. 3 Monate vor der Messung erfolgte. In allen drei in Abbildung 6.1 dargestellten Messungen wird auch der obere ClO-Peak recht gut vom Modell wiedergegeben, berücksichtigt man den Meßfehler sowie die geringe Höhenauflösung von Messung und Modell in dieser Höhe. SLIMCAT modelliert das obere ClO-Maximum bei einer potentiellen Temperatur von 1400 K, also in etwa 2-3 Kilometer unterhalb der a priori festgesetzten Inversionsstützstelle bei 40 km.

Der Vergleich der SUMAS/ASUR-Messungen des Chlorreservoirgases HCl mit dem 3D-Modell verlangt etwas mehr Aufmerksamkeit. Im Höhenbereich zwischen 30 und 50 km sind die Meßergebnisse wesentlich größer als die Modellwerte. Dieser Effekt ist schon bei dem Vergleich mit dem HALOE-Instrument aufgetreten, wo auf einen möglichen systematischen Fehler der Messung hingewiesen wurde. Andererseits besteht natürlich auch die Möglichkeit, daß das Modell aufgrund der Initialisierung mit den gegenüber unabhängigen Vergleichsmessungen systematisch etwa 10-20% niedrigeren HALOE-Daten noch ein gewisses Erinnerungsvermögen aufweist (siehe auch Abschnitt 5.4.2). Im unteren Höhenbereich unterhalb etwa 20 km ergeben Messung und Modell übereinstimmend sehr niedrige HCl-Mischungsverhältnisse, da zu dieser Jahreszeit HCl über die heterogenen Reaktionen an den Oberflächen der PSC's in aktives Chlor ($Cl_x = Cl + ClO + 2Cl_2O_2$) umgewandelt wurde. Während das HCl-Minimum im Modell jedoch in allen drei Beispielen bei ca. 18-20 km zu finden ist, sehen die SUMAS/ASUR-Messungen einen mit der Höhe variablen Verlauf des HCl-Profils, welcher auf ein unterschiedlich stark ausgeprägtes Absinken der gemessenen Luftmassen – und somit des HCl-Minimums – im Vergleich der drei Messungen hindeutet. Unter Berücksichtigung des glättenden Effekts der be-

grenzten Höhenauflösung von etwa 10 km in diesem Höhenbereich und dem statistischen Meßfehler von etwa 0.2 ppbv kann dennoch von einer Übereinstimmung im Rahmen der Fehlergrenzen gesprochen werden.

6.2.5 Räumliche Variabilität am Wirbelrand

Das SUMAS/ASUR-Radiometer ist aufgrund seiner hohen räumlichen Auflösung in der Lage, kleinräumige Änderungen der Mischungsverhältnisse der gemessenen Spurengase im Bereich des Wirbelrandes zu detektieren. Messungen von ClO über den Wirbelrand hinweg wurden bereits von [Crewell *et al.*, 1995] im Vergleich zum MLS-Instrument sowie von [Wohlgemuth, 1997] beschrieben, wobei letzterer insbesondere eine gute Übereinstimmung der Messungen mit dem SLIMCAT-Modell feststellte. 1996 wurden zum ersten Mal neben der Messung von ClO auch Messungen der Spurengase HCl und Ozon über den Rand des Polarwirbels durchgeführt. Diese Messungen sollen nun in diesem Abschnitt beschrieben und wieder mit dem 3D-Modell verglichen werden. Abbildung 6.2 zeigt die Flugrouten der beiden im folgenden näher behandelten Meßflüge vom 28.2.1996 und 6.3.1996. Die Karten sind mit den Konturen der potentiellen Vorticity auf der 475 K-Fläche unterlegt, wodurch die Lage des Polarwirbels am Tag der Messung verdeutlicht wird.

ClO

Abbildung 6.3 zeigt dazu zunächst sechs bei dem Rückflug von Kiruna nach Oberpfaffenhofen am 6.3.1996 gemessene ClO-Profile. Deutlich ist eine Abnahme des sich zunächst auf 1.4 ppbv belaufenden 20 km-Peaks beim Verlassen des Polarwirbels zu erkennen. Die Wirbelgrenze, also der Bereich des größten PV-Gradienten, liegt dabei auf der 475 K Isentropen bei PV-Werten zwischen 30 und 40 $\text{Km}^2\text{kg}^{-1}\text{s}^{-1}$. Die Übereinstimmung mit dem SLIMCAT-Modell ist wieder erstaunlich gut. Letztendlich werden Mischungsverhältnisse von 0.4 ± 0.2 ppbv bei einer größeren Höhe von 24 km am äußeren Rande des Vortex erreicht.

Im Gegensatz hierzu funktioniert der für die Modellierung der heterogenen Chemie zuständige Mechanismus im SLIMCAT-Modell bei einer anderen Messung weniger gut. Abbildung 6.4 zeigt hierzu die ClO-Ergebnisse eines Meßfluges vom 28.2.1996. Während die SUMAS/ASUR-Messungen ähnlich wie beim ersten Beispiel zunächst eine starke Chloraktivierung anzeigen (1.7 ± 0.25 ppbv ClO bei 20 km) und beim Verlassen des Polarwirbels auf ca. 0.4 ppbv ClO in 24 km Höhe abfallen, stimmt das Modell nur außerhalb des Polarwirbels befriedigend mit den Messungen überein. Innerhalb des Vortex kommt es zwar zu einer sehr guten Übereinstimmung bei ungefähr 16 und 24 km, dazwischen jedoch sind die Abweichungen des Modellergebnisses signifikant und ergeben

6.2. DIE SUMAS/ASUR MESSKAMPAGNE 1996

125

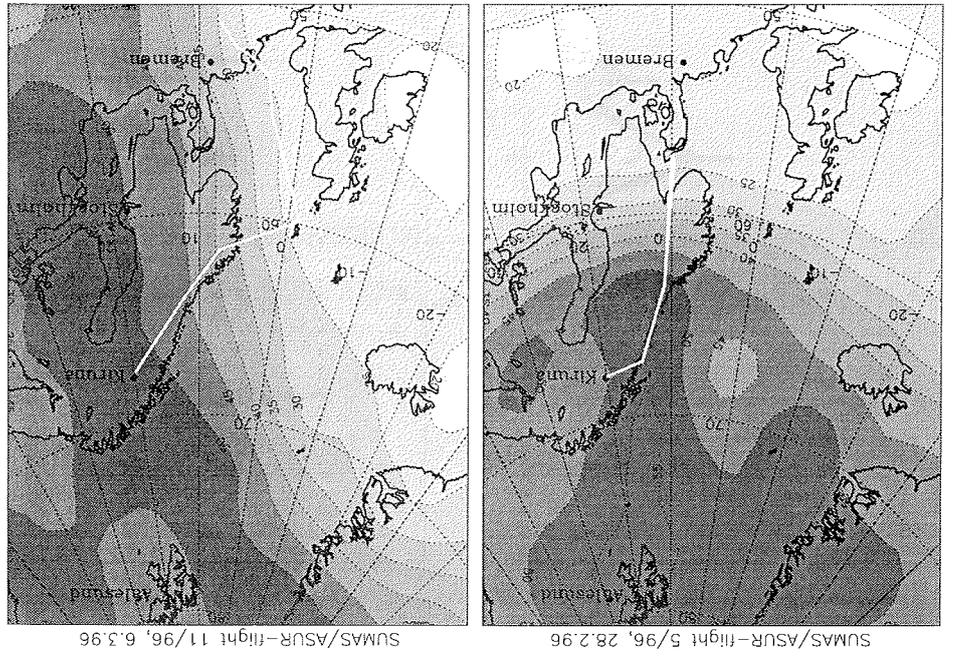


Abbildung 6.2: SUMAS/ASUR-Messflüge über den Rand des Polarwirbels. Links: Flug am 28.2.1996. Rechts: Transstrifung vom 6.3.1996. Die ECMWF-PV bei 475 K ist für den jeweiligen Tag als Kontur dargestellt.

ein um 1,3 ppbv niedrigeres ClO-Mischungsverhältnis als die Messung. SLIMCAT modelliert hier nur auf der 475 K-Isentrope eine starke Rückführung von ClO über die Reaktion mit NO_2 in das Reservoirgas ClONO_2 [M. Chipperfield, persönliche Mitteilung, 1997]. Offenbar hat das vom Modell benutzte Temperaturfeld gerade bei dieser Höhe einen Schwellwert überschritten und das für die heterogene Chemie zuständige Modul abgeschaltet, was zu einer Chlordeaktivierung führen muß. Damit wäre natürlich auch ein Rückgang des Ozonabbaus verbunden. Die für die Inversion der SUMAS/ASUR-Messungen verwendeten NMC-Temperaturen belaufen sich in diesem Höhenbereich auf ca. 198 K. Bei den Messungen am 25.2.96 (siehe Abbildung 6.1) wurden noch 195 K, am 6.3.96 (Abbildung 6.3) gar 193 K im Polarwirbel angegeben. Die Existenztemperatur für PSC-Typ I beläuft sich auf etwa 195 K. Nun läßt sich der Grund für die zu niedrigen Modellergebnisse bei 475 K an dieser Stelle nicht abschließend klären, insbesondere da der heterogene Mechanismus bei 430 K und 500 K funktioniert. Die Modellierung der Prozesse der heterogenen Chemie hängt offenbar sehr kritisch von den als Eingabeparameter verwendeten meteorologischen Analysen ab.

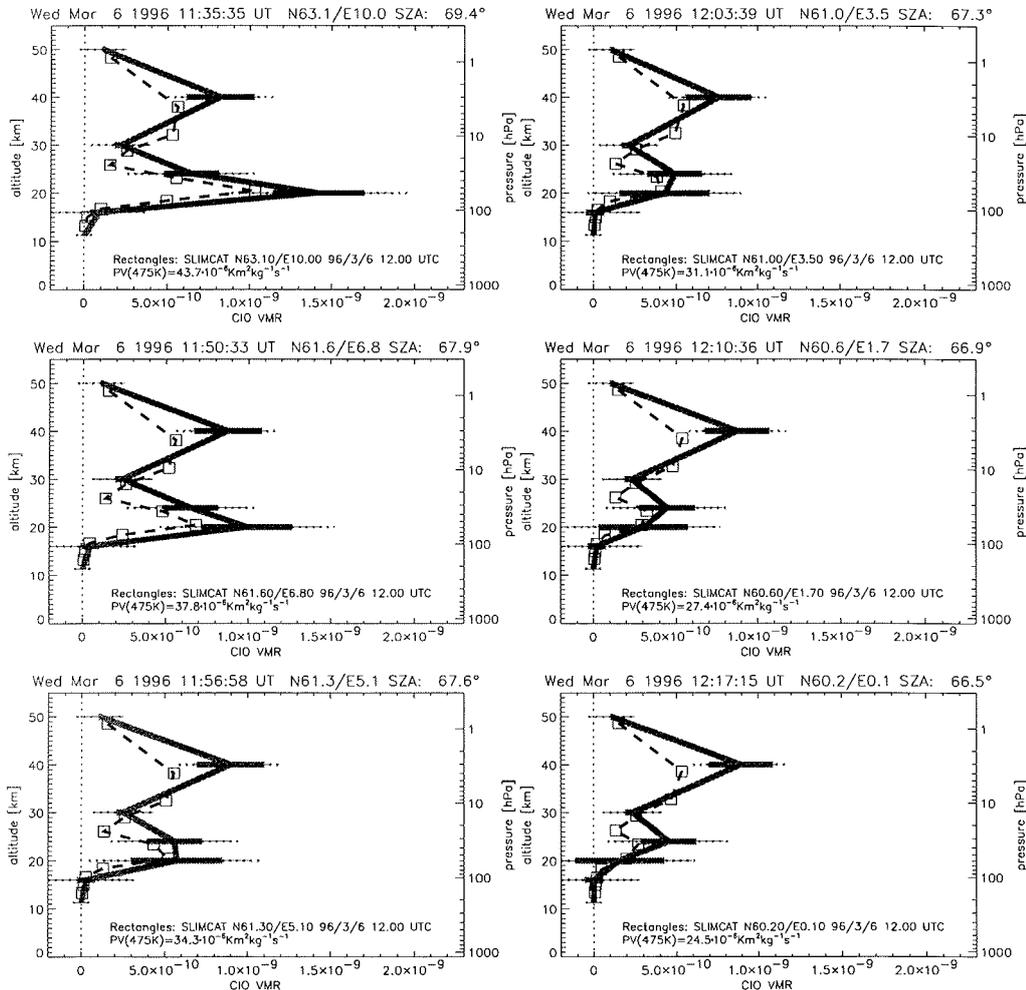


Abbildung 6.3: SUMAS/ASUR CIO-Messungen am Vortexrand vom 6.3.1996 im Vergleich mit SLIMCAT-Ergebnissen. Dargestellt sind sechs Messungen zwischen N 63.1°/E 10.0° (links oben) und N 60.2°/E 0.1° (rechts unten). Bei den hier angegebenen Positionen handelt es sich um die Koordinaten des Forschungsflugzeuges zum Zeitpunkt der Messung. Die Position relativ zum Polarwirbel ist den in den Grafiken angegebenen 475 K PV-Werten des ECMWF zu entnehmen.

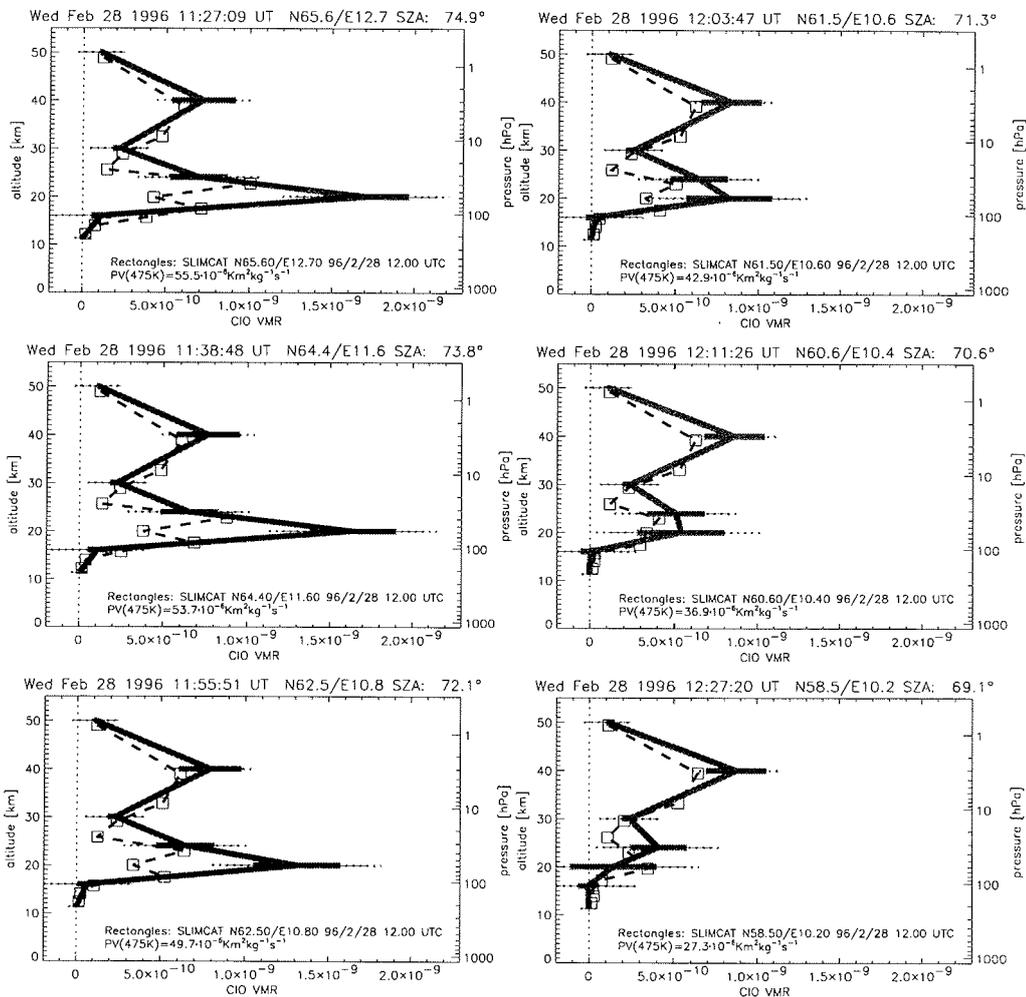


Abbildung 6.4: CIO am Vortexrand, 28.2.96. SUMAS/ASUR CIO-Messungen am Vortexrand vom 28.2.1996 im Vergleich mit SLIMCAT-Ergebnissen. Dargestellt sind sechs Messungen zwischen N 65.6°/E 12.7° (links oben) und N 58.5°/E 10.2° (rechts unten). Die Position relativ zum Polarwirbel ist den in den Grafiken angegebenen 475 K PV-Werten des ECMWF zu entnehmen.

HCl und Ozon

Bei dem am 28.2.96 durchgeführten Flug über den Wirbelrand handelt es sich um die erste Messung des SUMAS/ASUR-Systems, bei der ClO, HCl und Ozon bei einem Schnitt über den Vortexrand bei nahezu den gleichen geographischen Positionen gemessen wurden.

HCl- und Ozonmischungsverhältnisse werden seit 1996 aus den vom SUMAS/ASUR-Radiometer bei einer Mittelfrequenz von 625.917 GHz gemessenen Spektren bestimmt, was eine gleichzeitige Detektion beider Spurengase auf dem Rückflug nach Kiruna erlaubte. Auf dem Hinflug in südlicher Richtung wurde bereits ein ClO-Schnitt gemessen (Abbildung 6.4). Jeweils drei HCl- und Ozonprofile sind nun in Abbildung 6.5 dargestellt, wobei repräsentative Profile für innerhalb, am Rande und außerhalb des Polarwirbels ausgewählt wurden. Deutlich läßt sich im Falle von HCl eine leichte Zunahme des Mischungsverhältnisses unterhalb von 20 km erkennen, wenn Breitengrad oder potentielle Vorticity abnehmen. Diese erwartete Zunahme ist auch im SLIMCAT-Modell wiederzufinden, wenngleich das HCl-Minimum im Falle des Modells wieder bei größeren Höhen zu finden ist. Dieser Effekt wurde ja bereits diskutiert. Für Ozon lassen die SUMAS/ASUR-Messungen kaum eine signifikante Änderung des Mischungsverhältnisses erkennen, stimmen aber im Rahmen der Fehler gut mit den SLIMCAT-Profilen überein. Im Höhenbereich zwischen ca. 30 und 45 km kommt es allerdings zu einer leichten Unterschätzung der Messungen durch das Modell. Die HCl- und Ozonmessungen aus Abbildung 6.5 lassen sich auch mit den ClO-Messungen vom Hinflug in Abbildung 6.4 vergleichen. Dabei entspricht die oben dargestellte HCl/O₃-Messung dem ClO-Profil links unten, die in der Mitte und unten dargestellten HCl/O₃-Messungen sind jeweils den ClO-Messungen in der Mitte rechts bzw. unten rechts zuzuordnen. Die Zeitdifferenz zwischen den hier dargestellten ClO- und HCl/O₃-Messungen liegt dabei zwischen etwa 30-90 min. Die Abnahme des ClO-Mischungsverhältnisses geht dabei einher mit einer Zunahme des HCl-Mischungsverhältnisses beim Verlassen des Polarwirbels. Eine quantitative Zuordnung bei einer festen Höhe innerhalb und außerhalb des Polarwirbels kann allerdings nicht erfolgen, da hierzu das Absinken der Luft im Polarwirbel zu berücksichtigen wäre.

N₂O

Letztendlich sollen noch SUMAS/ASUR-Messungen des langlebigen Spurengases N₂O den SLIMCAT N₂O-Profilen gegenübergestellt werden. Hierfür werden die anhand der 652.833 GHz-Linie ermittelten N₂O-Profile verwendet. Der Vergleich langlebiger Spurengase wie N₂O mit den entsprechenden Daten des 3D-Modells ist insbesondere wichtig um herauszufinden, ob die Zirkulation der Atmosphäre im Modell realistisch simuliert wird. Eine Übereinstimmung zwischen Messung und Modell bei den langlebi-

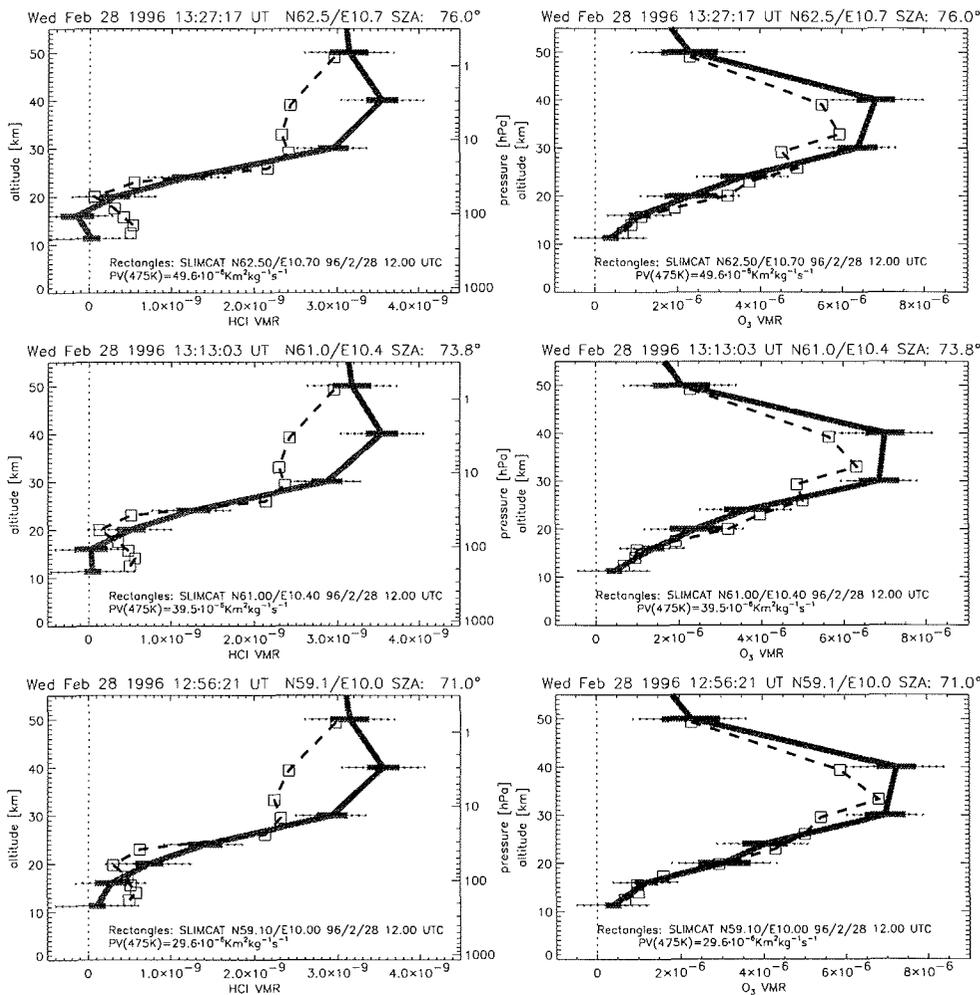


Abbildung 6.5: SUMAS/ASUR HCl- und Ozonmessungen innerhalb (oben), am Rand (Mitte) und außerhalb (unten) des Polarwirbels vom 28.2.1996. Die entsprechenden Ergebnisse des SLIMCAT-Modells sind gestrichelt dargestellt. ECMWF 475K PV-Werte sind in den Grafiken angegeben.

gen Spurengasen stellt somit die Grundvoraussetzung für die Vergleiche mit kurzlebigen Spurengasen und die Trennung von chemischen und dynamischen Effekten durch das Modell dar.

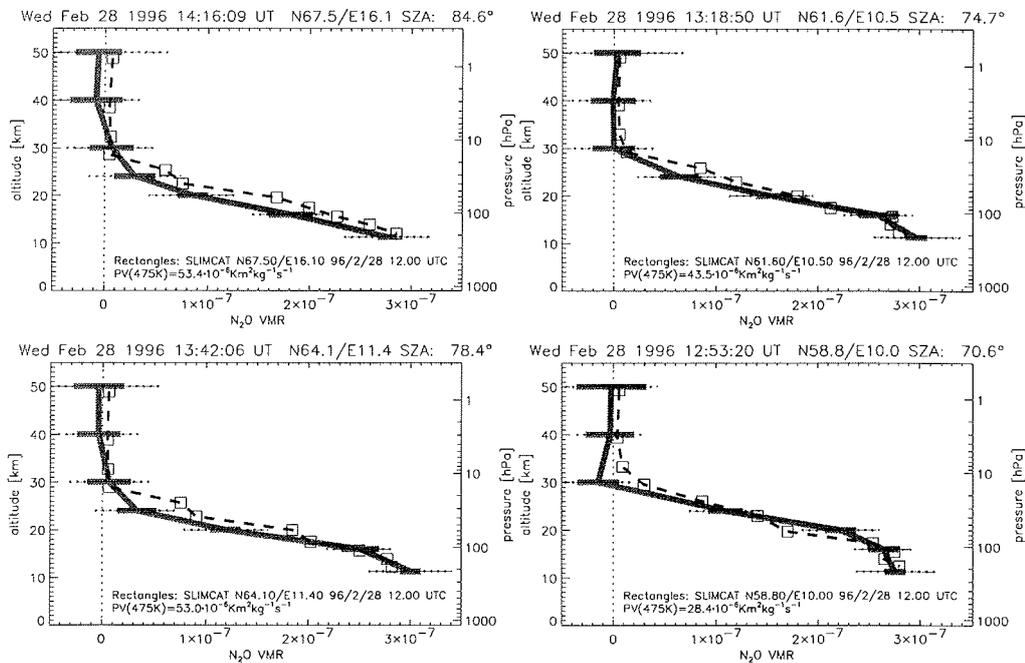


Abbildung 6.6: SUMAS/ASUR N_2O -Messung vom 28.2.1996 innerhalb (links oben und unten), im Randbereich (oben rechts) sowie außerhalb des arktischen Polarwirbels (rechts unten). Zusätzlich sind SLIMCAT-Modellergebnisse gestrichelt dargestellt. ECMWF 475 K PV-Werte sind jeweils in den Grafiken angegeben.

Abbildung 6.6 zeigt nun die vier bei dem Meßflug am 28.2.1996 gemessenen N_2O -Profile, welche außerhalb, im Randbereich und innerhalb des Polarwirbels gemessen wurden. Zunächst läßt sich für feste Werte von N_2O ein Vergleich des Absinkens der Luftmassen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels durchführen. Die festgestellte Höhendifferenz am Datum der Messung beläuft sich dabei auf 4-5 km bei 100 ppbv N_2O , was innerhalb des Vortex einer Höhe von um die 20 km, außerhalb von an die 25 km entspricht. Dieser Befund ist konsistent mit der zuvor festgestellten Veränderung des ClO-Maximums zu größeren Höhen beim Verlassen des Polarwirbels. Ein Mischungsverhältnis von 200 ppbv N_2O ist innerhalb des Vortex bei 15-17 km, außerhalb bei einer Höhe von 20-21 km zu finden. Natürlich sind die hier gemachten Angaben nur als qualitative Abschätzungen zu

verstehen, da allein der statistische Meßfehler eine Unsicherheit von etwa 2-3 km ausmacht. Trotzdem kann auch ein Eindruck über die vertikale Variabilität der Luftmassen beim Vergleich der beiden im Vortex bei nahezu gleicher potentieller Vorticity gemessenen N_2O -Profile gewonnen werden (Abbildung 6.6, linke Seite), welche insbesondere bei hohen N_2O -Mischungsverhältnissen, also niedrigen Höhen, eine Höhendifferenz von einigen Kilometern aufweisen. Dies gibt einen Hinweis auf die Ursache der innerhalb des Wirbels beobachteten Variation des HCl-Minimums mit der Höhe (siehe Abbildung 6.1) und den sich daraus ergebenden Schwierigkeiten beim Abschätzen der HCl-Abnahme. Der chemische Abbau von HCl im Polarwirbel soll daher später noch genauer untersucht werden.

An dieser Stelle werden nun zunächst die Ergebnisse des 3D-Modells diskutiert. In Modell und Messung ist übereinstimmend innerhalb und am Rande des Polarwirbels oberhalb 30 km bei Berücksichtigung des Meßfehlers kein N_2O mehr zu finden. Darüberhinaus stimmen die N_2O -Mischungsverhältnisse im unteren Höhenbereich bei N_2O -Mischungsverhältnissen größer als 200 ppbv zumeist gut überein. Im Inneren des Wirbels wird jedoch vom Modell systematisch ein leicht geringeres Absinken der Luft simuliert, was ungefähr einer Höhendifferenz zwischen Modell und Messung von 1-4 km im Bereich 50-200 ppbv N_2O entspricht. Eine Differenz in dieser Größenordnung wurde ja bereits für die Höhe der HCl-Minima in Modell und Messung festgestellt (Abbildungen 6.1 und 6.5). Abweichungen der verschiedenen im 3D-Modell (UKMO-Daten) und für die Inversionen (NMC-Daten) verwendeten Druckprofile kommen als Ursache hierfür nicht in Frage. Der Vergleich der N_2O -Daten liefert also einen Hinweis auf die Ursache der beim Vergleich der HCl-Daten aufgetretenen Diskrepanz, wenngleich eine abschließende Interpretation aufgrund der begrenzten Höhenauflösung des Experiments nicht möglich ist.

Schnitt über den Wirbelrand

Zum Schluß dieses Abschnittes über die räumliche Variabilität der vom SUMAS/ASUR-Radiometer gemessenen Spurengase am Rand des Polarwirbels sollen die Ergebnisse des Meßfluges vom 28.2.1996 noch einmal übersichtlich dargestellt werden. Hierzu werden die gemessenen Profile als Kontur gegen die Höhe und die potentielle Vorticity (als Maß für die Stärke des Polarwirbels) aufgetragen.

In Abbildung 6.7 sind die beim Flug in südliche Richtung durchgeführten Messungen des chemisch aktiven Chlormonoxids und die Messungen des langlebigen Spurenstoffs N_2O dargestellt, wobei letztere hauptsächlich auf dem Rückflug aufgenommen wurden. Die Darstellung als Kontur zeigt noch einmal sehr deutlich das Absinken der Luft mit zunehmenden PV-Werten im Bereich des unteren ClO-Maximums, welches sich bei Werten der potentiellen Vorticity größer als $30 \cdot 10^{-6} \text{Km}^2 \text{kg}^{-1} \text{s}^{-1}$ zu entwickeln beginnt. Der Absinkeffekt ist auch an den N_2O -Konturlinien zu erkennen. So fällt z.B. die 125 ppbv-

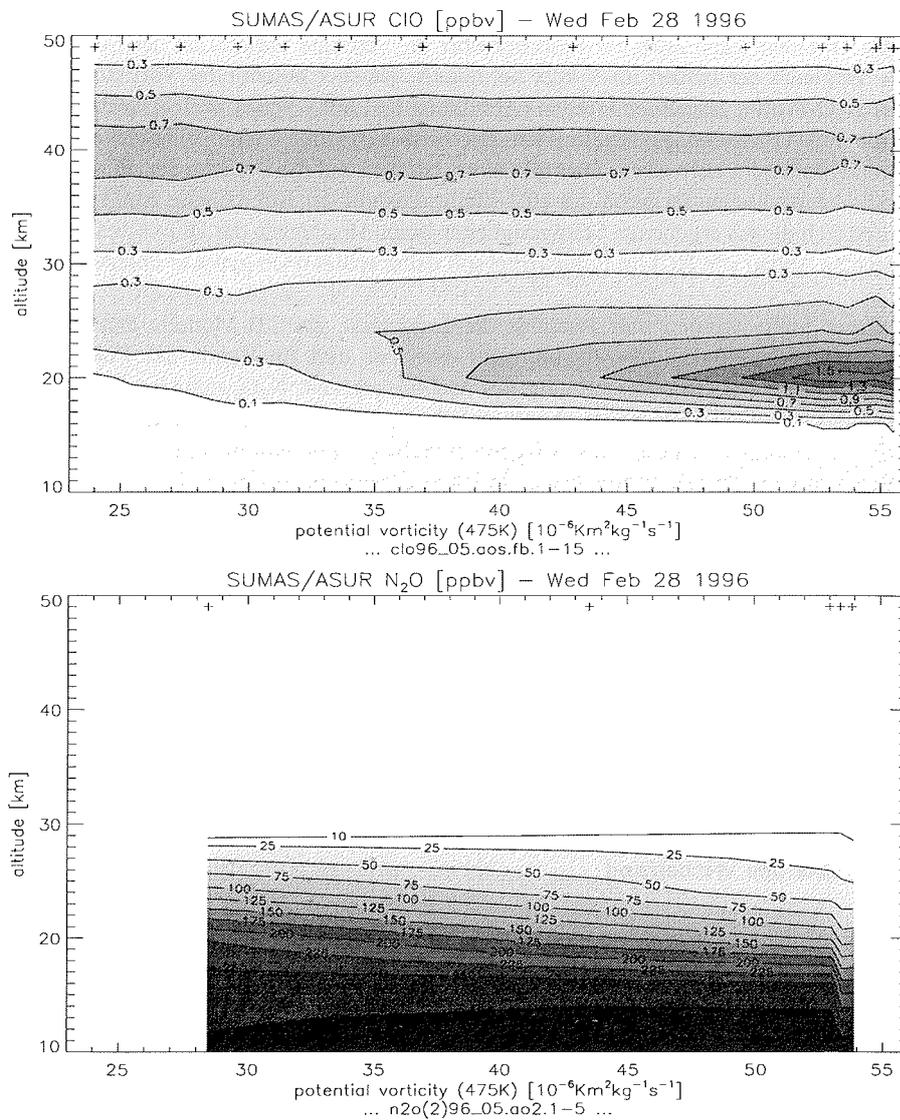


Abbildung 6.7: Oben: CIO-Höhenprofile vom 28.2.1997 gemessen beim Unterfliegen des Wirbelrandes dargestellt als Konturen gegen die potentielle Vorticity auf der 475 K-Isentropenfläche. Unten: N₂O-Profile vom gleichen Meßflug. Die mittleren Positionen der Einzelmessungen in Bezug auf die PV bei 475 K sind als Kreuze unter dem oberen Rand der Darstellungen angedeutet.

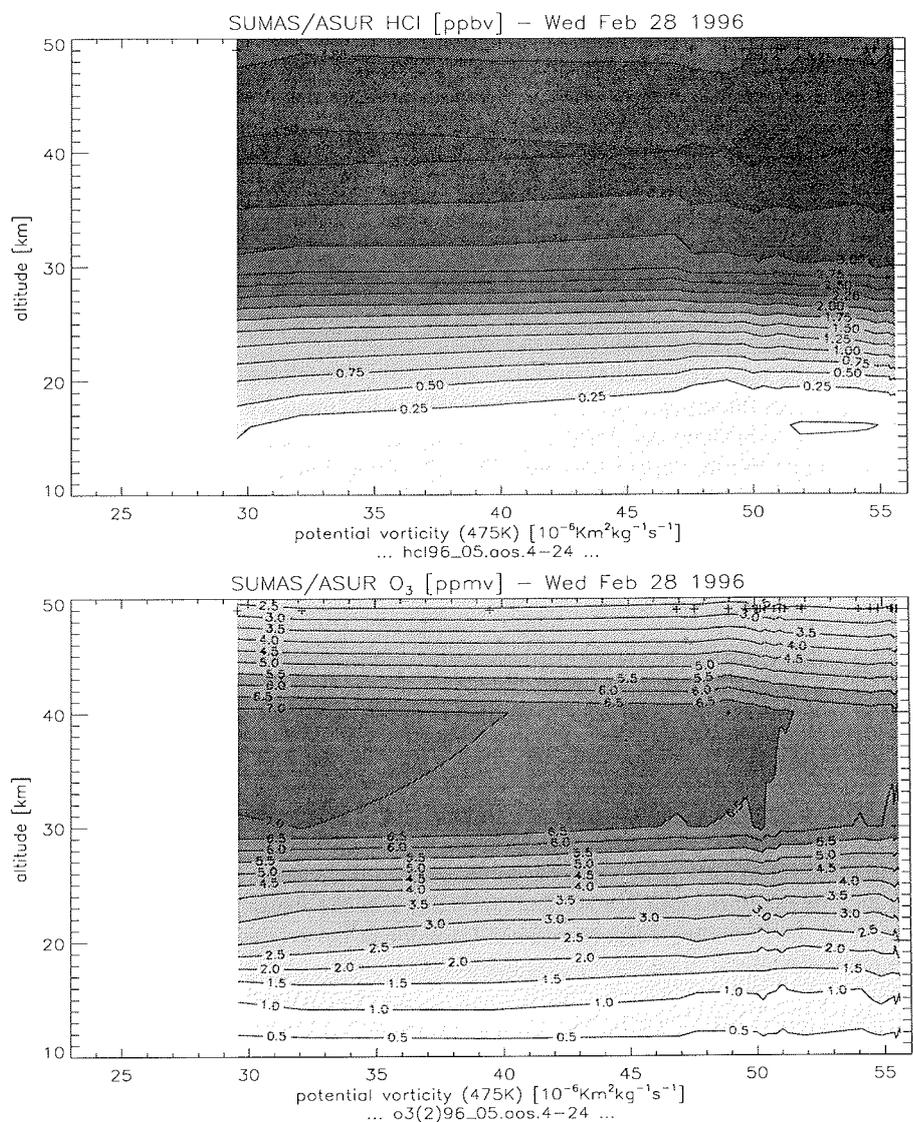


Abbildung 6.8: Oben: HCl-Höhenprofile vom 28.2.1997 gemessen beim Unterfliegen des Wirbelrandes als Konturen gegen die 475-K-PV. Unten: Ozon vom gleichen Meßflug über den Wirbelrand. Die Einzelmessungen sind als Kreuze unter dem oberen Rand der Darstellungen angedeutet.

N_2O -Kontur von einer Höhe von 23-24 km bei 30 PV-Einheiten auf ca. 20 km im Wirbel bei 53 PV-Einheiten ab. Die anderen Konturen konstanten N_2O -Mischungsverhältnisses zeigen einen ähnlichen Verlauf. Bei größeren PV-Werten als 53 PV-Einheiten ist ein noch stärkeres Absinken um weitere 1-2 km zu erkennen, welches durch zwei unabhängige Einzelmessungen festgestellt wurde. Eine dieser Messungen wurde zu Beginn des Meßfluges und die andere kurz vor der Landung in Kiruna durchgeführt. Die geographische Distanz zwischen diesen beiden Messungen und der Messung bei 53 PV-Einheiten ist mit über drei Breitengraden recht groß (siehe auch Abbildung 6.6 links oben und unten). Obwohl sich die potentielle Vorticity als Maß für die Horizontalbewegung beim Vordringen des Forschungsflugzeuges in das Innere des Polarwirbels kaum noch ändert, repräsentieren die beiden letzten N_2O -Messungen somit das Wirbelinnere, während die davor durchgeführte Messung noch dem Randbereich zuzuordnen ist.

Abbildung 6.8 zeigt vollständigshalber die Konturdarstellungen der HCl- und Ozonmessungen vom Rückflug in den Wirbel in nördliche Richtung. Für HCl ist in 20 km Höhe zunächst eine Abnahme des Mischungsverhältnisses mit zunehmender PV zu verzeichnen. Minimale Werte werden bei etwa 47-50 PV-Einheiten erreicht, bevor wieder eine Zunahme – offenbar durch das Absinken HCl-reicher Luftmassen aus höheren Schichten – festzustellen ist. Die Ozonmessungen zeigen lediglich eine geringfügige Abnahme des 20 km Mischungsverhältnisses von ungefähr 3 ppmv außerhalb auf 2.5 ppmv innerhalb des Polarwirbels. Desweiteren wurde im Höhenbereich zwischen 30 und 40 km eine signifikante Abnahme des Mischungsverhältnisses beim Eindringen in den Polarwirbel beobachtet, was ein für Ozon in dieser Höhe typisches Meßergebnis darstellt und in zahlreichen SUMAS/ASUR-Messungen wiederzufinden ist. Ursache hierfür ist die relativ kurze Lebensdauer von Ozon von nur wenigen Tagen oberhalb von 30 km. Die in diesem Höhenbereich beobachteten Ozonmischungsverhältnisse sind somit hauptsächlich durch die von der solaren Strahlung angeregten photochemischen Prozesse der letzten Tage vor der Messung bestimmt, welche von den Trajektorien der beobachteten Luftpakete in diesem kurzen Zeitraum abhängen [Sinnhuber *et al.*, 1997]. Luftmassen außerhalb des Vortex erfahren im allgemeinen kleinere Sonnenzenitwinkel, sodaß sich das Gleichgewicht zwischen photochemischer Produktion von Ozon über die Photolyse von Sauerstoff und dem durch die Strahlung hervorgerufenen Ozonabbau bei größeren Ozonmischungsverhältnissen einstellt.

6.2.6 Räumliche Variabilität innerhalb des Polarwirbels

Die Mischungsverhältnisse der Spurengase unterliegen nicht nur am Rand des Polarwirbels erheblichen Variationen, sondern können auch innerhalb des Wirbels starke Gradienten aufweisen. Als Ursache hierfür kommen z.B. Transportprozesse im nach außen hin gut isolierten Polarwirbel in Frage. Als Beispiel für die Variabilität der Chloraktivierung im arktischen Polarwirbel sei an dieser Stelle eine Messung der Spurengase ClO und HCl

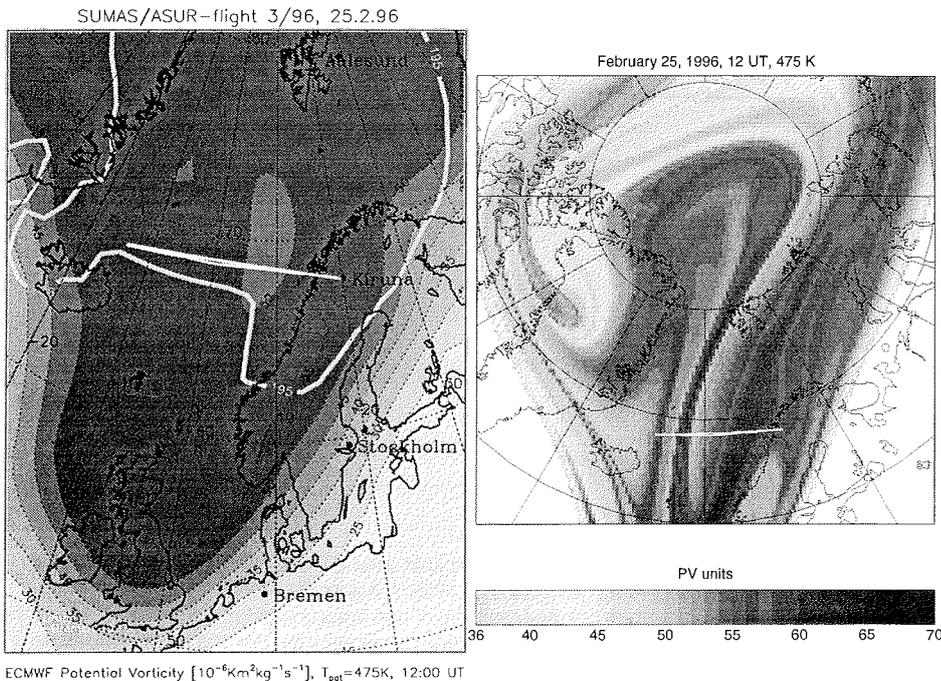


Abbildung 6.9: SUMAS/ASUR-Meßflug vom 25.2.1996 innerhalb des Polarwirbels. Der Flug wurde so konzipiert, daß auf dem ersten Teil in westlicher Richtung ein nahezu konstanter Sonnenzenitwinkel von ca. 82° gewährleistet war. Auf dem Rückflug wurde die Tag-Nacht Grenze überflogen. Links: Darstellung unterlegt mit ECMWF-Daten der 475 K- PV. Zusätzlich ist die 195 K-Kontur bei 50 hPa eingezeichnet. Rechts: Hochoaufgelöste Darstellung des Polarwirbels durch Rückwärtstrajektorienrechnung gemäß [Simhuber et al., 1996].

vom 25.2.1996 dargestellt. Die Flugroute der Messung ist unterlegt mit der ECMWF-PV bei 475 K in Abbildung 6.9 zu finden. Zusätzlich ist die 195 K-Kontur der physikalischen Temperatur bei 50 hPa eingezeichnet. Durch die Wahl der Flugstrecke in westliche Richtung bei 69° nördlicher Breite konnte aufgrund der entsprechenden Geschwindigkeit des Forschungsflugzeuges ein nahezu konstanter Sonnenzenitwinkel gewährleistet werden, sodaß der Einfluß des Tagesganges eliminiert wurde. Durch eine stabile Situation des Polarwirbels über dem Nordatlantik war zudem eine nur geringe Variation der potentiellen Vorticity von 51 ± 2 PV-Einheiten auf der 475 K-Fläche entlang der Flugbahn gegeben. Ziel des Fluges war die Bestimmung des CIO-Tagesganges nach der Wende beim Überqueren der Tag-Nacht Grenze auf dem Rückflug nach Kiruna in östliche Richtung. Zu diesem Zweck sollten möglichst konstante und homogene Bedingungen entlang der Flugstrecke herrschen, welche auf dem Hinflug ja vermessen werden konnten. Das Ergebnis dieses ersten Teils des Meßfluges ist in Abbildung 6.10 dargestellt. Die

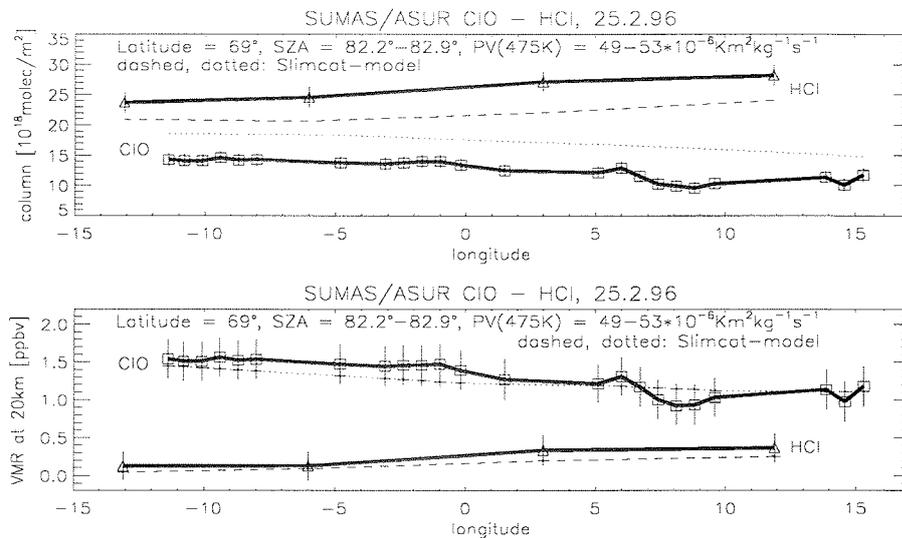


Abbildung 6.10: Oben: Antikorrelation und Variabilität von CIO- und HCl innerhalb des Polarwirbels am Beispiel eines Meßfluges vom 25.2.1996 in westlicher Richtung. Die Messungen fanden bei nahezu konstantem Sonnenzenitwinkel und aufgrund einer stabilen Vortexlage bei hohen, entlang der Flugstrecke nur wenig variierenden Werten der 475 K-PV statt. Obere Grafik: Säulendichten, untere Abbildung: Mischungsverhältnisse bei 20 km. Zusätzlich sind die entsprechenden SLIMCAT-Ergebnisse eingezeichnet (siehe Legende).

Messung ergibt einen deutlichen Anstieg der CIO-Säule in Richtung Westen, was aufgrund der an sich stabilen Vortexlage nicht zu erwarten war. Der Anstieg der CIO-Säule um ca. $5 \cdot 10^{18}$ Moleküle pro Quadratmeter wird dabei von einem Abfall der HCl-Säule in vergleichbarer Größenordnung begleitet. Dieser Sachverhalt findet sich auch in den 20 km Mischungsverhältnissen der beiden Spurengase wieder. Die schlechtere Übereinstimmung der Partitionierung von HCl und CIO im Falle der Säulendichten ist darauf zurückzuführen, daß im Modell eine dickere Schicht erhöhten CIO's bzw. niedriger HCl-Werte modelliert wird. Die deutliche Antikorrelation von CIO und HCl im Polarwirbel ist allerdings nur in dieser Messung so ausgeprägt festzustellen, da während der Meßkampagne 1996 nur bei dem hier dargestellten Meßflug hinreichend oft HCl gemessen wurde und zudem nicht immer eine so homogene Vortexsituation vorlag. Am Tag der Messung lag im arktischen Polarwirbel somit keine räumlich homogene Chloraktivierung vor. Zum gleichen Ergebnis kommt auch das SLIMCAT-Modell, dessen Ergebnisse ebenfalls in Abbildung 6.10 eingezeichnet sind. Die SUMAS/ASUR-Messungen zeigen allerdings eine wesentlich größere Variabilität als die Modellergebnisse, dessen Auflösung nur 5.625° Längengrade beträgt. Während die 20 km-Mischungsverhältnisse sehr gut vom Modell reproduziert werden, weichen die Säulendaten etwas von der Messung ab, da SLIMCAT einen etwas breiteren CIO-Peak simuliert, wie schon in Abbildung 6.1 dargestellt wurde.

Zur Aufklärung der Ursache der im Vortex beobachteten Variabilität ist in Abbildung 6.9 auf der rechten Seite eine mittels des „Reverse Domain Filling“-Verfahrens berechnete hochaufgelöste PV-Karte für den Tag der Messung abgebildet. Für eine nähere Erläuterung dieses Verfahrens sei auf Abschnitt 1.1.6 oder [Sinnhuber *et al.*, 1996] verwiesen. Die in der hochaufgelösten PV-Karte deutlicher zu erkennenden feinen Strukturen der Strömungen innerhalb des Polarwirbels lassen sich allerdings nicht eindeutig der Messung zuordnen, obwohl diese – insbesondere was den CIO-Datensatz betrifft – eine horizontale Auflösung entlang der Flugbahn kleiner als ein Längengrad aufweist. Aufgrund des Zeitunterschiedes von etwa vier Stunden zwischen Messung und PV-Karte und der Ungenauigkeit des in die Berechnung der Rückwärtstrajektorien einfließenden Windfeldes ist eine genauere Übereinstimmung auch nicht zu erwarten. Festzustellen bleibt, daß die Strömungen auf der 475 K Fläche senkrecht zur Flugbahn verlaufen und die Messung somit einen Schnitt durch das Strömungsmuster des Polarwirbels an diesem Tag darstellt.

6.2.7 Ozonabbau im arktischen Winter 1995/96

Als Resultat des außergewöhnlich kalten Winters 1995/96 in der arktischen Stratosphäre und der daraus folgenden starken Chloraktivierung aufgrund heterogener Prozesse an PSC-Oberflächen wurde ein stärkerer Ozonabbau als jemals zuvor festgestellt, der in seiner Größenordnung mit dem des antarktischen Ozonlochs vergleichbar ist.

[Müller *et al.*, 1997] stellt bei seiner Analyse von HALOE-Ozondaten einen Abbau im Totalozon von ca. 160 ± 19 DU im Höhenbereich 12-21 km fest, was größere Ozonverluste als die erstmals 1985 von [Farman *et al.*, 1985] für das Ozonloch im antarktischen Frühjahr berichteten Verluste von etwa 100 DU bedeutet. Übereinstimmende Ergebnisse erzielt auch [Manney *et al.*, 1996], die aufgrund von MLS-Ozonnmessungen im Zeitraum zwischen Ende Dezember 1995 und Anfang März 1996 über Ozonverluste, die etwa 2/3 der in einem äquivalenten Vergleichszeitraum festgestellten aktuellen Ozonverluste in der Antarktis ausmachen, berichtet. Ein wichtiger Unterschied zwischen den Hemisphären ist dabei das generell früher beobachtete Abbrechen der Ozonabbauprozesse in der Arktis als in der Antarktis. [Rex *et al.*, 1997] verwendet koordinierte Ozonsondenmessungen und vergleicht für die Berechnung der Ozonverlustraten nur Messungen, die aufgrund von Trajektorienberechnungen ein und dasselbe räumlich begrenzte Luftpaket mit einem zeitlichen Abstand von wenigen Tagen beobachtet haben („Matches“). Als Resultat dieser Messungen errechnet er in guter quantitativer Übereinstimmung mit den MLS-Messungen einen maximalen Ozonverlust im arktischen Vortex von insgesamt 2.4 ± 0.3 ppm ($\approx 64\%$) zwischen dem 20. Januar und dem 9. April 1996 in einer Schicht bei ca. 18-20 km, was den größten jemals in der Arktis beobachteten Ozonverlust darstellt.

Analyse der SUMAS/ASUR Ozon- und HCl-Beobachtungen

Aufgrund der großen dynamischen Variabilität und des diabatischen Absinkens der Luft im arktischen Polarwirbel ist es schwierig, zwischen dynamisch und chemisch bedingten Veränderungen des Ozonmischungsverhältnisses zu unterscheiden. Der chemische Ozonabbau versteckt sich hinter dem vertikalen Transport ozonreicher Luftmassen von oben in die untere Stratosphäre. Gleiches gilt für die Chlorfreisetzung aus dem Spurengas HCl.

Um dennoch eine Interpretation vorzunehmen, müssen die SUMAS/ASUR-Messungen des in der unteren Stratosphäre langlebigen Spurengases N_2O hinzugezogen werden. Die N_2O -Messungen ermöglichen eine Zuordnung zwischen den ermittelten SUMAS/ASUR-Mischungsverhältnissen aus dem durch das Absinken der Luft gekennzeichneten Inneren des Polarwirbels und den außerhalb des Vortex durchgeführten Messungen. Die Luft im Polarwirbel gilt als dynamisch weitgehend isoliert, da Austauschprozesse mit mittleren Breiten nur eine begrenzte Rolle spielen. Der hier durchgeführten Analyse liegt zugrunde, daß das Verhältnis zwischen Spurengasen ausreichend langer photochemischer Lebensdauer in der Stratosphäre nahezu linear ist. [Plumb & Ko, 1992] geben insbesondere ein lineares Verhältnis zwischen dem langlebigen Spurengas N_2O und Ozon für die Winterstratosphäre mittlerer und höherer Breiten an, welches durch Satelliten- und In Situ-Flugzeugmessungen sowie Modellrechnungen bestätigt wird [WMO, 1995]. Dieses Verhältnis sollte über den Winter erhalten bleiben, wenn keine chemische Prozessierung stattfindet. Eine Veränderung der N_2O - O_3 -Korrelation kann somit als Indikator für einen chemischen Ozonabbau angesehen werden. Ebenso kann der Vergleich zwischen den N_2O -HCl-Korrelationen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels als Indikator für die Chloraktivierung betrachtet werden [Müller *et al.*, 1996]. Die Korrelation von N_2O mit den normalerweise langlebigen Spurengasen Ozon oder HCl bietet also die Möglichkeit, dynamisch bedingte Änderungen der Mischungsverhältnisse aufgrund der Absinkbewegung der Luft im Polarwirbel herauszufiltern und nur noch Luftmassen des gleichen N_2O -Mischungsverhältnisses außerhalb und innerhalb des Wirbels zu vergleichen. Im Prinzip entspricht dies einer Transformation der Messungen auf das N_2O -Mischungsverhältnis als Höhenachse. Die außerhalb des Vortex durchgeführten Messungen stellen dabei für ein gegebenes N_2O -Mischungsverhältnis eine Referenz für die ohne chemische Prozessierung erwarteten Ozon oder HCl-Mischungsverhältnisse innerhalb des Wirbels dar.

Für die Korrelationsanalyse werden alle während der 96er-Meßkampagne vom SUMAS/ASUR-System bei 652,833 GHz gemessenen N_2O -Profile verwendet, da die Messungen dieser erstmals 1996 gemessenen Spektrallinie eine bessere Datenqualität als die Messungen bei 627,752 GHz aufweisen. Jeder N_2O -Messung wird dann eine möglichst zeitgleich durchgeführte HCl- und Ozon-Messung zugeordnet. Aufgrund der hohen zeitlichen und räumlichen Auflösung des SUMAS/ASUR-Instruments betragen die Abweichungen zwischen den Messungen nur einige Minuten und spielen daher

kaum eine Rolle. Für jede Höhenstützstelle ergibt sich jeweils ein Wertepaar N_2O -Ozon und N_2O -HCl. Die Ergebnisse der Analyse sind in den Abbildungen 6.11 für HCl und 6.12 für Ozon dargestellt. Die Lage der Messungen in Bezug auf den Polarwirbel ist durch die Wahl unterschiedlicher Symbole und Linientypen für die jeweilige potentielle Vorticity bei 475 K gekennzeichnet. Messungen innerhalb des Wirbels decken dabei einen Bereich zwischen 40 und $60 \text{ Km}^2\text{kg}^{-1}\text{s}^{-1}$ ab, außerhalb liegen die PV-Werte unterhalb $30 \text{ Km}^2\text{kg}^{-1}\text{s}^{-1}$.

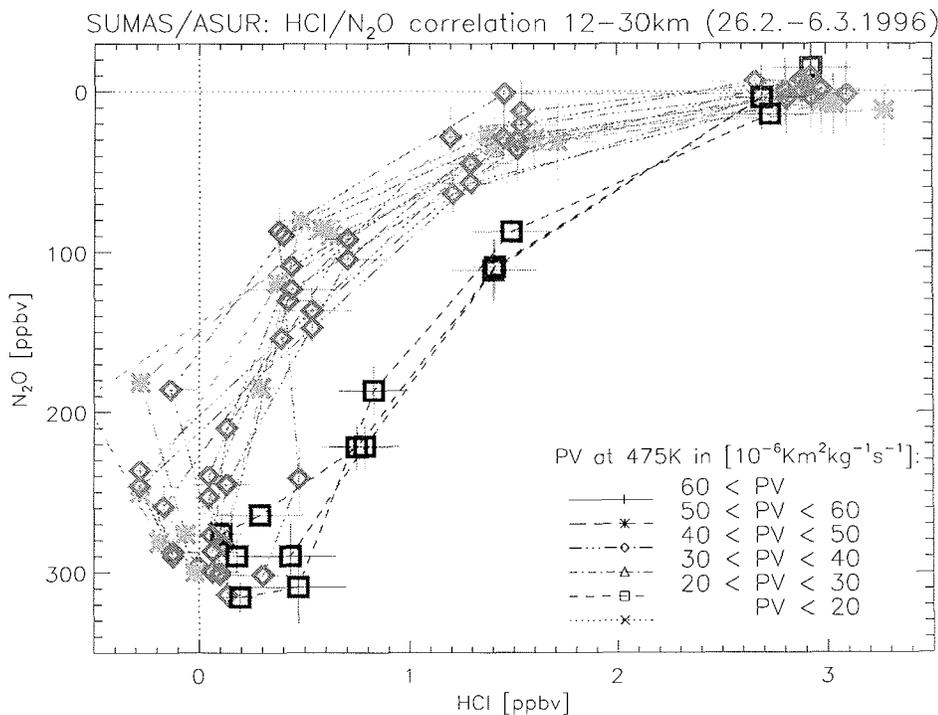


Abbildung 6.11: Korrelation der SUMAS/ASUR N_2O - und HCl Messungen für den Zeitraum 26.2.1996 bis 6.3.1996. Die Symbole und Linientypen sind hinsichtlich der potentiellen Vorticity bei 475K gestaffelt (siehe Legende). N_2O -Messungen wurden nur bei Werten zwischen 20 und 30 PV-Einheiten (außerhalb des Wirbels) bzw. 40 und 60 PV-Einheiten (innerhalb) durchgeführt.

Für HCl läßt sich ein deutlicher Rückgang um maximal ca. 0.9 ± 0.3 ppbv bei 100 ppbv N_2O im Polarwirbel gegenüber den außerhalb des Polarwirbels durchgeführten Messungen abschätzen. Dies entspricht in etwa einer Höhe von 20 km im Polarwirbel oder 25 km außerhalb. Da der vertikale Transport berücksichtigt wurde, kann dieser Verlust somit

eindeutig als eine chemische Chloraktivierung aus dem Reservoirgas HCl interpretiert werden, insofern man horizontale Austauschprozesse vernachlässigt. Die bereits zuvor aus den reinen Meßdaten getroffene Feststellung bezüglich eines HCl-Rückganges im Polarwirbel unterhalb von 20 km kann somit durch diese Analyse untermauert werden, wobei das Ergebnis der Korrelationsanalyse aufgrund der Vielzahl der Messungen im Polarwirbel als Vortexmittelwert anzusehen ist. Der angegebene Fehler ist das Resultat einer Größtfehlerabschätzung bezüglich der innerhalb und außerhalb des Vortex auf einem festem N₂O-Niveau gemessenen HCl-Mischungsverhältnisse. Die SUMAS/ASUR-Messungen sind konsistent mit den Ergebnissen einer von [Müller *et al.*, 1997] veröffentlichten Korrelationsanalyse von HALOE CH₄- und HCl-Messungen, welche einen Verlust an HCl von 1-2 ppbv bei 100 ppbv N₂O im März 1996 gegenüber den im vorangegangenen November in mittleren Breiten gemessenen Werten ergibt. Für die Umrechnung von N₂O in CH₄ wurde dabei die in [Müller *et al.*, 1996] angegebene lineare Beziehung⁵ verwendet. Die vom SUMAS/ASUR-System festgestellten geringeren HCl-Verluste können durch die den Analysen jeweils zugrundegelegten Referenzmessungen erklärt werden. So ergeben die im November zwischen 46° und 51° nördlicher Breite durchgeführten HALOE-Messungen HCl-Mischungsverhältnisse von um die 2.2 ppbv bei 100 ppbv N₂O. Die entsprechenden SUMAS/ASUR-Referenzmessungen wurden knapp außerhalb des Polarwirbels im Februar und März 1996 durchgeführt und ergeben niedrigere HCl-Mischungsverhältnisse von nur etwa 1.5 ppbv, was die Diskrepanz zwischen den beiden Analysen erklärt. Zum Vergleich: Deutlich außerhalb des Polarwirbels in der Arktis durchgeführte SUMAS/ASUR-Messungen aus dem Februar 1994 ergaben in guter Übereinstimmung mit Messungen des ballongestützten SLS-Radiometers HCl-Mischungsverhältnisse von 1.5-2.2 ppbv bei 100 ppbv N₂O [de Valk *et al.*, 1997].

Für Ozon ist aufgrund seiner hohen dynamischen Variabilität eine Unterscheidung zwischen chemischen und dynamischen Verlusten im allgemeinen recht schwer zu treffen. Die in Abbildung 6.12 dargestellte Korrelation mit N₂O erlaubt auch hier einen Vergleich zwischen den Ozonmischungsverhältnissen bei gegebenem N₂O innerhalb und außerhalb des Vortex. Für den Zeitraum der dargestellten Messungen zwischen dem 26.2.1996 und dem 6.3.1996 wird ein chemischer Ozonverlust von 2.0 ± 0.7 ppmv im Vergleich zu den zur gleichen Zeit außerhalb des Wirbels gemessenen Mischungsverhältnissen bei 100 ppbv N₂O – dies entspricht einer Höhe von etwa 20 km im Vortex – festgestellt. Bei 200 ppbv N₂O ist der Ozonverlust noch etwa um 10% größer. Die Höhe des maximalen Ozonverlustes entspricht dabei in etwa der Höhe der Inversionsstützstelle bei 16 km. Eine genaue Höhenbestimmung ist allerdings wegen der Glättung der Inversionsergebnisse aufgrund der begrenzten Höhenauflösung des Instruments nicht möglich. Der vom SUMAS/ASUR-Radiometer ermittelte Ozonverlust für Anfang März 1996 ist in Anbetracht der experimentellen Unsicherheiten und limitierten Höhenauflösung der Messungen konsistent mit den für den Zeitraum Januar bis April von [Rex *et al.*, 1997] ermittelten

⁵N₂O [ppb] = 262.5 CH₄ [ppm] - 136

Rekordozonverlusten von etwa 2.4 ± 0.3 ppmv. [Müller *et al.*, 1997] findet als Resultat seiner Korrelationsanalyse von HALOE-Daten einen etwas größeren Ozonverlust von um die 3 ppmv bei 100 ppbv N_2O , wobei hier wieder eine Referenzmessung aus mittleren Breiten im November zugrundegelegt wird. Die HALOE-Ozondaten sind dabei sowohl im als auch außerhalb des Polarwirbels systematisch niedriger als die vom SUMAS/ASUR-System bestimmten Mischungsverhältnisse.

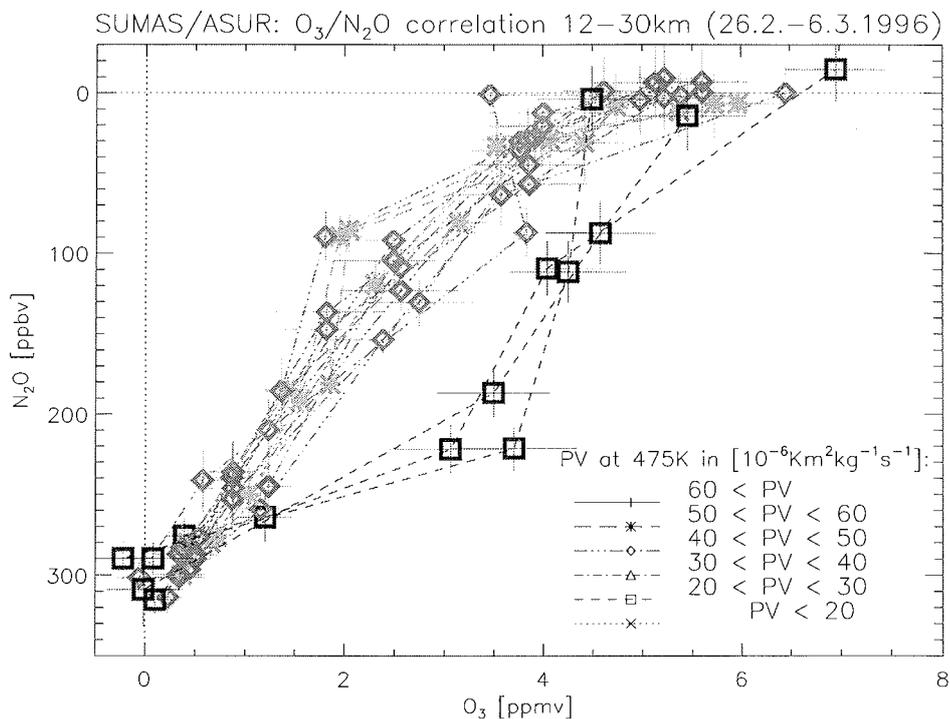


Abbildung 6.12: Korrelation der SUMAS/ASUR N_2O - und Ozonmessungen für den Zeitraum 26.2.1996 bis 6.3.1996. Symbole und Linientypen sind wie in Abbildung 6.11 gestaffelt.

Insgesamt betrachtet liegen die mittels der Korrelationsanalyse aus den SUMAS/ASUR-Messungen festgestellten HCl- und Ozonverluste also in einer vergleichbaren Größenordnung mit den Ergebnissen anderer Experimente und bestätigen somit deren Befund über einen Rekordozonverlust in der arktischen Stratosphäre im Winter 1995/96. Sowohl HCl- als auch Ozon sind dabei im Polarwirbel recht inhomogen verteilt.

Vollständigkeitshalber ist in Abbildung 6.13 das Ergebnis der Korrelationsanalyse für ClO dargestellt. Aufgrund des starken ClO-Tagesganges wurden nur Messungen bei Sonnenzenitwinkeln kleiner als 80° berücksichtigt. Die starke Chloraktivierung im

arktischen Wirbel mit Spitzenwerten bis zu 2.0 ± 0.25 ppbv ClO ist deutlich zu erkennen. Zusätzlich kann jetzt auch ein Eindruck über die Variabilität des Chlormonoxids im Polarwirbel gewonnen werden, dessen maximale Mischungsverhältnisse sich zwischen 0.8 und 2.0 ppbv bewegen und N_2O -Werten im Bereich 80 bis 140 ppbv zuzuordnen sind. Die niedrigeren ClO-Mischungsverhältnisse wurden dabei vorwiegend bei kleineren Werten der potentiellen Vorticity zwischen 40 und 50 PV-Einheiten gemessen.

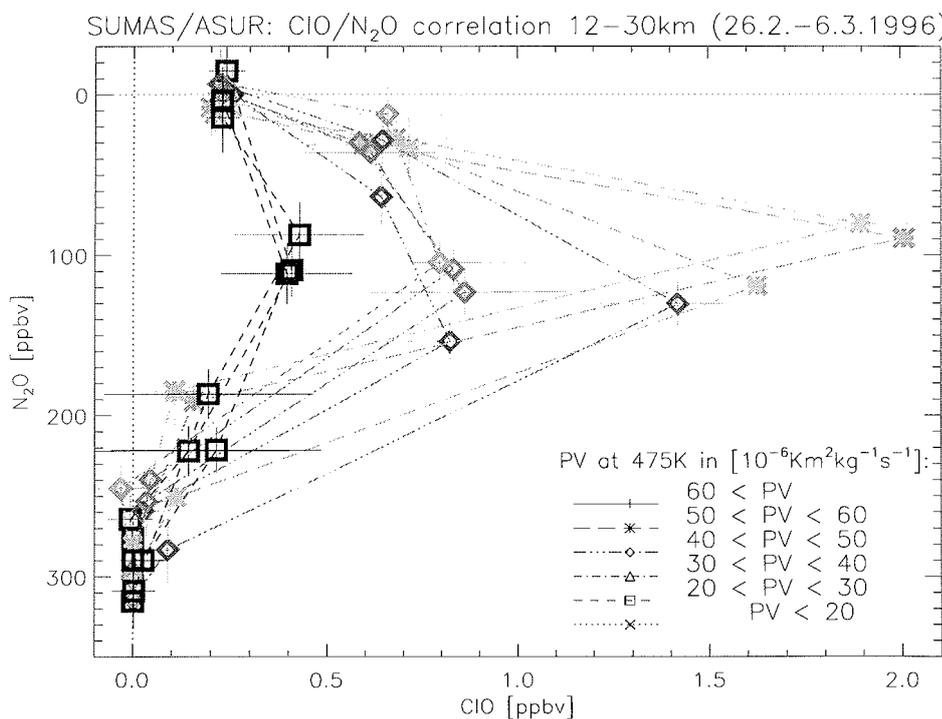


Abbildung 6.13: Korrelation der SUMAS/ASUR N_2O - und ClO-Messungen für den Zeitraum 26.2.1996 bis 6.3.1996. Symbole und Linientypen sind wie in Abbildung 6.11 gestaffelt. Aufgrund des starken ClO-Tagesganges wurden nur Messungen bei Sonnenzenitwinkeln kleiner als 80° berücksichtigt.

Chlornitratfalle?

In diesem Abschnitt soll kurz auf eine weitere von [Rex *et al.*, 1997] bei der Interpretation seiner koordinierten Ozonsondenmessungen aufgeworfene Fragestellung eingegangen werden. Er beobachtet bei seiner Analyse einen Abfall der Ozonverlustrate um die Hälfte

in der Mitte des Februars, obwohl zu diesem Zeitpunkt aufgrund der ausreichend niedrigen Temperaturen noch PSC's existieren könnten. Die weitere Freisetzung aktiven Chlors ließe dann ein Weiterlaufen des Ozonabbauprozesses erwarten.

Hier wird folgender, auch durch eine Modellrechnung unterstützter Mechanismus vermutet: Zunächst wird gemäß Gleichung (1.20) durch die heterogenen Reaktionen von HCl und ClONO₂ an PSC's und nachfolgender Einwirkung von Sonnenlicht aktives Chlor gebildet. ClONO₂ bildet sich wieder durch die Reaktion von ClO mit NO₂ und es stellt sich ein Gleichgewicht ein. HCl wird jedoch wesentlich langsamer zurückgebildet. Die MATCH-Messungen unterstützen nun die Idee, daß eine erneute effektive Chloraktivierung über die schnelle Reaktion von HCl mit ClONO₂ an PSC's, nicht möglich ist, wenn HCl bereits vollständig verbraucht ist.

Messungen des SUMAS/ASUR-Radiometers unterstützen die These der Chlornitratfalle nun insoweit, als daß innerhalb des Polarwirbels tatsächlich im Höhenbereich zwischen 16 und 20 km nur sehr niedrige HCl-Mischungsverhältnisse beobachtet wurden. Dieser Sachverhalt wurde bereits in Abbildung 6.1, in der SUMAS/ASUR ClO- und HCl-Messungen einander gegenübergestellt sind, für einige Einzelmessungen dargestellt und wird durch die Korrelationsanalyse von HCl mit N₂O bestätigt. Desweiteren existieren auch HALOE HCl-Messungen aus dem an die SUMAS/ASUR-Kampagne anschließenden Zeitraum, welche ebenfalls einen deutlichen Rückgang der HCl-Mischungsverhältnisse zwischen 16 und 20 km im Inneren des Polarwirbels belegen [Müller *et al.*, 1997]. Im Gegensatz zu den HCl-Messungen lassen die vom SUMAS/ASUR-Instrument gemessenen hohen ClO-Werte auf den ersten Blick eine Fortsetzung des Ozonabbaus für den Zeitraum der Meßkampagne erwarten, welcher ja auch von [Rex *et al.*, 1997] – wenn auch mit geringerer Stärke als zuvor bis Mitte Februar – beobachtet wurde. Die SUMAS/ASUR-Meßkampagne ist jedoch zu kurz, um eine langsame Abnahme der Chloraktivierung über einen längeren Zeitraum nachweisen zu können. Daten des UARS/MLS-Instruments für den Zeitraum Ende Januar bis Anfang März 1996 zeigen hingegen eine deutliche Abnahme des ClO-Mischungsverhältnisses im Vortexmittel und unterstützten damit die Theorie der Chlornitratfalle [Rex *et al.*, 1997].

6.3 Die arktische Stratosphäre im Winter 1997

Nach der ausführlichen Darstellung der Messungen aus dem Februar und März 1996 soll in diesem Abschnitt kurz auf die im Februar 1997 durchgeführten Messungen mit dem SUMAS/ASUR-Instrument eingegangen werden.

Der Winter 1997 war der dritte in Folge mit sehr kalten Temperaturen in der unteren Stratosphäre der Arktis. Nachdem im Dezember und Januar noch Werte um das langjährige Mittel festgestellt wurden, kam es ab Mitte Februar zu einem starken Temperaturabfall. Insbesondere im März wurden wieder rekordverdächtig tiefe Temperaturen gemessen.

Der Polarwirbel blieb etwa bis Ende März ohne eine zwischenzeitliche Stratosphärenenerwärmung bestehen. Die besonders tiefen Temperaturen über den gesamten Monat März ermöglichten eine im Vergleich der letzten Jahre außergewöhnlich lange Periode der PSC-Existenz bis Ende März.

Die kalten Temperaturen führten erneut zu einem starken Ozonabbau in der Größenordnung von 40% im Polarwirbel der Nordhemisphäre verglichen mit den außerhalb des Wirbels gemessenen Werten, wie Satelliten- und Ozonsondenmessungen übereinstimmend ergaben. Der Hauptozonschwund wurde in der unteren Stratosphäre zwischen 16 und 24 km festgestellt [Burrows *et al.*, 1997] [NOAA, 1997] [EU, 1997 (b)].

SUMAS/ASUR Campaign with the FALCON Aircraft 1997

Flight	Date	Start	Duration	Flight route	Special aims
6	19.2.	10:53	3:38 h	Oberpfaffenhofen - Trondheim - Bodø - Kiruna	cross section outside vortex
7	22.2.	11:17	3:10 h	Kiruna - Trondheim - N72/E10 - Kiruna	vortex edge; filaments
8	24.2.	6:40	2:26 h	Kiruna - N68/E5 - N66/E22 - Kiruna	Ozone dawn depletion rate
9	25.2.	14:24	4:20 h	Kiruna - N70/W10 - N70/E25 - Kiruna	day-night with trajectory
10	26.2.	11:05	3:42 h	Kiruna - Bodø - Trondheim - Oberpfaffenhofen	LPMA; vortex edge; baseline

Tabelle 6.3: Übersicht über die im Februar 1997 mit dem SUMAS/ASUR-System durchgeführten Meßflüge (Nr. 6-10). Zuvor wurden bereits 5 Flüge mit dem 500 GHz-Empfänger des Rutherford-Appleton Laboratory durchgeführt (Flugnummern 1-5), auf die in dieser Arbeit nicht näher eingegangen wird.

Im Februar 1997 wurde im Zeitraum 19.2.-26.2.1997 lediglich eine kurze Meßkampagne mit fünf Meßflügen des SUMAS/ASUR-Systems durchgeführt. Hierbei wurden auf den Transferflügen von Oberpfaffenhofen nach Kiruna erneut Schnitte über die geographische Breite gemessen, wobei durch die Veränderung der zweiten Zwischenfrequenzsektion des Radiometers ein schnelleres Umschalten zwischen den Meßfrequenzen als zuvor und damit die Messung aller Moleküle in ungefähr gleichen räumlichen Abständen ermöglicht wurde (siehe auch 4.1.1). Für erste Ergebnisse der Messungen von Flug 10 sei auf [Bremer, 1997] verwiesen. Weitere Flüge dienten der Überprüfung der Tagesgänge von Ozon in 40 km Höhe sowie der Bestimmung von kleinräumigen Strukturen im Wirbelinneren. Die Messungen wurden wenn möglich mit den Überflügen der satellitengestützten Instrumente ILAS auf dem japanischen ADEOS Satelliten und GOME auf dem europäischen ERS-2 Satelliten koordiniert. Eine Übersicht der Meßkampagne ist in Tabelle 6.3 zu finden.

Im Rahmen dieser Arbeit wird nun lediglich auf den Meßflug vom 25.2.1997, der als Hauptziel die Messung der ClO-Rückführung in das Nachtreservoir Cl₂O₂ bei Eintritt der

Dunkelheit hatte (siehe Kapitel 6.5), eingegangen. Die Messungen wurden im Polarwirbel bei einer über den gesamten Flug nahezu konstanten potentiellen Vorticity von um die 50 PV-Einheiten auf der 475 K-Isentropenfläche durchgeführt. Aus der Analyse der Messungen ergeben sich tagsüber maximale ClO-Mischungsverhältnisse von 1.3 ± 0.25 ppbv bei einer Höhe von 20 km. Dies zeigt, daß wie im vorangegangenen Winter eine starke Chloraktivierung im Polarwirbel zum Zeitpunkt der Meßkampagne bei einem gleichzeitig erniedrigten HCl-Gehalt in der unteren Stratosphäre vorlag. Die Ergebnisse für ClO sind konsistent mit den bei vergleichbaren Werten der potentiellen Vorticity während der 1996er-Kampagne festgestellten ClO-Maximalwerten. Als Beispiel sind in Abbildung 6.14 jeweils ein typisches ClO- und HCl-Profil dargestellt. Den Messungen gegenübergestellt sind wieder Modellrechnungen des SLIMCAT-Modells für den Tag der Messung. Wie schon im vorangegangenen Winter ist die Übereinstimmung im Fall des Chlorradikals ClO sehr gut. Auch für HCl läßt sich im Rahmen der Fehlergrenzen eine Bestätigung der Modellergebnisse durch die Messung bei Höhen größer als etwa 24 km feststellen, während im unteren Höhenbereich – wie auch bei vielen Messungen des Jahres 1996 – das HCl-Minimum bei etwas niedrigeren Höhen ermittelt wurde (siehe zum Vergleich z.B. Abbildung 6.1).

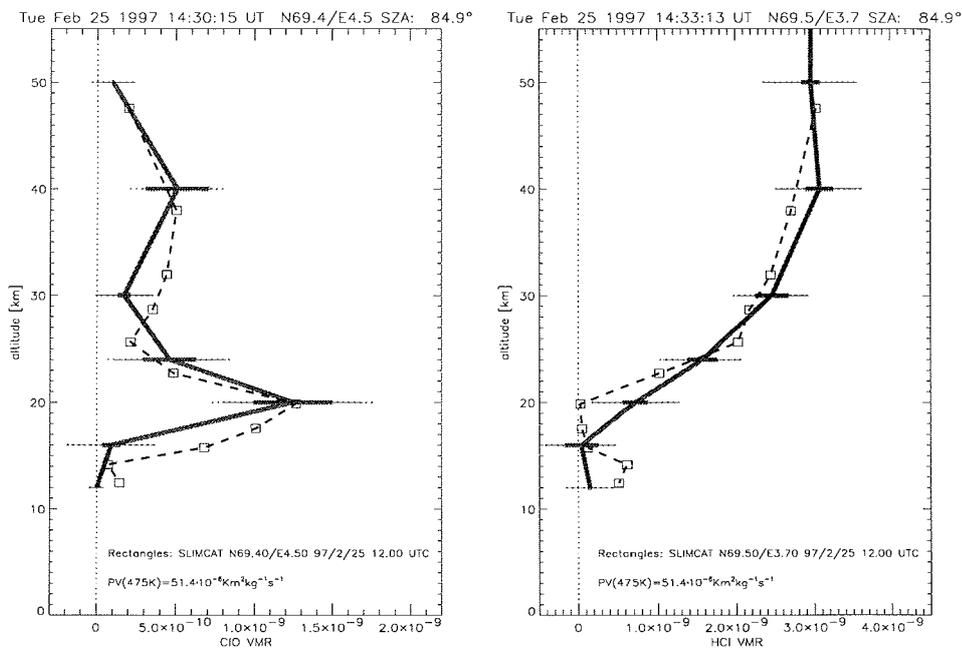


Abbildung 6.14: Typische ClO und HCl-Messung des SUMAS/ASUR-Empfängers vom 25.2.1997 im Polarwirbel bei einer potentiellen Vorticity von etwa $51 \text{ Km}^2\text{kg}^{-1}\text{s}^{-1}$ auf dem 475K-Niveau.

Aufgrund der SUMAS/ASUR-Messungen wurde also auch im Februar 1997 wie in den beiden Jahren zuvor eine sehr starke Chloraktivierung im arktischen Polarwirbel festgestellt. Diese hatte erneut einen sehr starken Ozonabbau zur Folge. Da eine weitere Zunahme der organischen und anorganischen Chlorverbindungen in der unteren Stratosphäre bis zur Jahrtausendwende erwartet wird (siehe Abschnitt 1.2.3), ist auch in der näheren Zukunft im Falle kalter Winter mit drastischen Ozonverlusten in der Arktis zu rechnen.

6.4 6-Jahres Vergleich für ClO- und HCl

Nach der Darstellung der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Spurengasmessungen kann der schon von [Wohlgemuth, 1997] begonnene Vergleich der ClO- und HCl-Säulendichten der verschiedenen Meßkampagnen um die Ergebnisse der Jahre 1996 und 1997 vervollständigt werden.

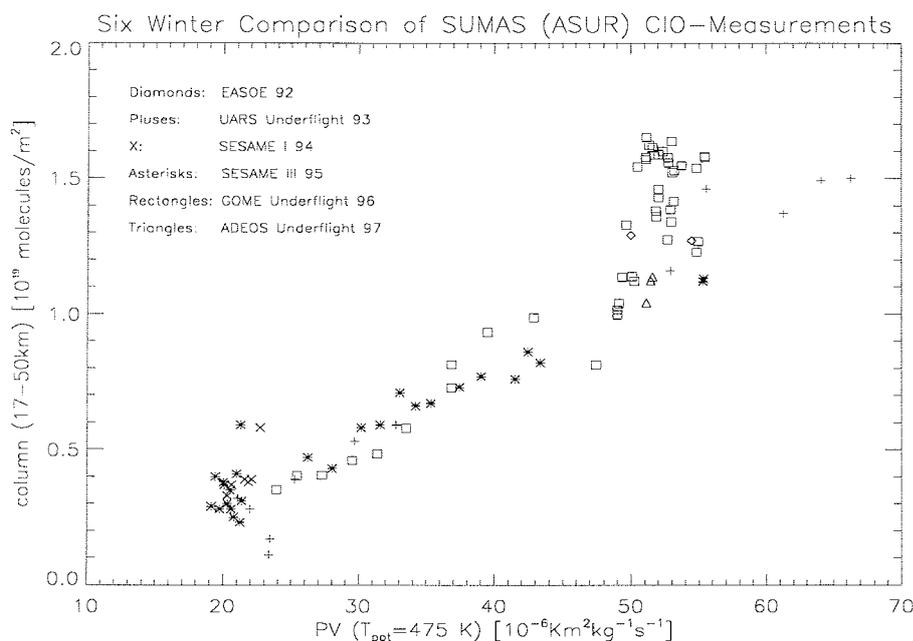


Abbildung 6.15: ClO-Säulen berechnet aus den vom SUMAS/SMS- und SUMAS/ASUR-System gemessenen Mischungsverhältnissen im Höhenbereich 17-50 km im Vergleich der Jahre. Für die Darstellung wurden die Februar-Messungen der Jahre 1992-1996 sowie die Daten des Meßfluges vom 25.2.1997 verwendet. Aufgrund des starken ClO-Tagesganges wurden nur Messungen bei Sonnenzenitwinkeln kleiner als 80° berücksichtigt. Es ergibt sich ein nahezu lineares Verhältnis zur potentiellen Vorticity bei 475 K.

Für diesen Vergleich wurden ausschließlich tagsüber gemessene Februarprofile verwendet, aus denen Säulendichten im Höhenbereich 17-50 km bestimmt wurden. Durch den Vergleich von Säulendichten anstelle von Mischungsverhältnissen werden Fehler aufgrund der unterschiedlichen Darstellungen der Profile in den verschiedenen Jahren (Boxen, lineare Interpolation zwischen festen Stützstellen) verringert. Abbildung 6.15 zeigt die Korrelation der ClO-Säulendichten mit der potentiellen Vorticity der 475 K-Isentropen. Diese Atmosphärenschicht trägt im Falle gestörter Chemie am stärksten zur Gesamtsäule bei. Hierbei wird ein nahezu linearer Verlauf erhalten, wobei die Streuung gerade im Bereich hoher PV-Werte allerdings erheblich ist. Insbesondere die im Februar 1996 vom SUMAS/ASUR-System im Polarwirbel gemessenen ClO-Säulendichten zeigen einen systematischen Trend zu höheren Werten. Die Messungen bei einer PV von mehr als 50 PV-Einheiten repräsentieren das Wirbelinnere. Die bei diesen Werten beobachtete Streuung kann somit durch die unterschiedlich starke Chloraktivierung im Polarwirbel erklärt werden.

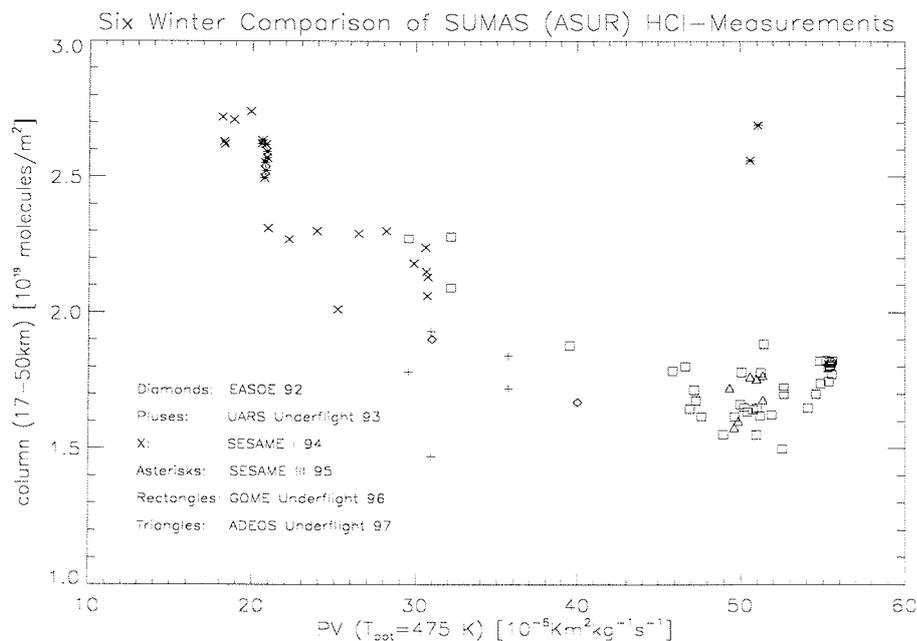


Abbildung 6.16: HCl-Säulen berechnet aus den vom SUMAS- und SUMAS/ASUR-System gemessenen Mischungsverhältnissen im Höhenbereich 17-50 km im Vergleich der Jahre. Für die Darstellung wurden die Februar-Messungen der Jahre 1992-1997 verwendet.

Die Antikorrelation der HCl-Säulendichten mit der PV ist dagegen etwas schwächer ausgeprägt (Abbildung 6.16). Im Gegensatz zu den aus dem 95er-Datensatz der SESAME-

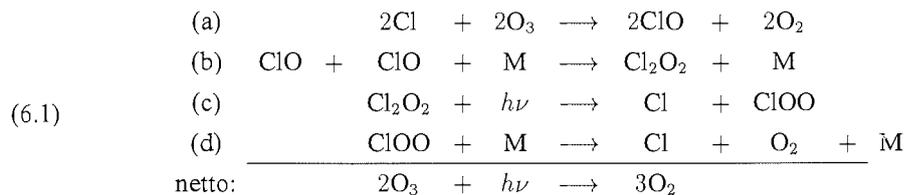
Kampagne stammenden Ausreißern bei hohen PV-Werten ergeben die innerhalb des Polarwirbels gemessenen Säulen der Jahre 1996 und 1997 ausschließlich niedrige Werte. Desweiteren zeigen die HCl-Ergebnisse der UARS-Unterflug Kampagne des Jahres 1993 einen Trend zu außergewöhnlich kleinen Säulen. Diese Messungen wurden noch mit dem ungekühlten SUMAS-Radiometer durchgeführt. Die Messungen des seit 1994 eingesetzten wesentlich empfindlicheren SUMAS/ASUR-Systems sind dagegen – bis auf die beiden angesprochenen Ausreißer – wesentlich homogener verteilt.

6.5 Messungen des ClO-Tagesgangs

Die hohe Sensitivität des flugzeuggetragenen SUMAS/ASUR-Systems erlaubt neben der Bestimmung der räumlichen Variabilität der gemessenen Spurenstoffe auch eine Erkundung zeitlich schnell ablaufender Prozesse wie z.B. der Änderung der ClO-Mischungsverhältnisse aufgrund photochemischer Prozesse in Abhängigkeit der Sonneneinstrahlung.

6.5.1 Motivation

In den winterlichen Polarwirbeln bei noch hohen Sonnenzenitwinkeln und sehr tiefen Temperaturen spielt der bereits in 1.2.5 beschriebene ClO-Dimer-Zyklus eine entscheidende Rolle für den starken Ozonabbau in der unteren Stratosphäre:



Dieser Mechanismus ist nur unter der Einwirkung von Licht möglich. In der Nacht findet keine Photolyse des Dimers statt und der katalytische Ozonabbauzyklus bricht ab. Die Reaktionen (6.1) (a) und (d) laufen um Größenordnungen schneller ab als die beiden anderen Reaktionen, die somit die Geschwindigkeit des ClO-Dimer Zyklus bestimmen. Am Tage stellt damit die Dimerbildungsrate den begrenzenden Reaktionsschritt dar. Für die

Partitionierung von CIO-Dimer und Monomer im Gleichgewicht ergibt sich aus den beiden mittleren Gleichungen (b) und (c) des Reaktionsschemas folgender Zusammenhang:

$$(6.2) \quad \frac{[\text{Cl}_2\text{O}_2]}{[\text{ClO}]} = \frac{k_{(\text{ClO}+\text{ClO}+\text{M})}[\text{ClO}][\text{M}]}{k_{(\text{Cl}_2\text{O}_2+\text{M})}[\text{M}] + J_{\text{Cl}_2\text{O}_2}}$$

$k_{(\text{ClO}+\text{ClO}+\text{M})}$ und $k_{(\text{Cl}_2\text{O}_2+\text{M})}$ stellen dabei die Reaktionskonstanten für die Bildung bzw. die thermische Dissoziation des Dimers dar und $J_{\text{Cl}_2\text{O}_2}$ ist die Dimerphotolyserate. Die Klammern symbolisieren Konzentrationsangaben für die jeweiligen Gase. In der Nacht sind CIO und Cl_2O_2 ausschließlich entsprechend der zweiten Reaktion in 6.1 partitioniert. Bei den niedrigen Temperaturen in der unteren Stratosphäre im Polarwirbel stellt sich dann ein Gleichgewicht zugunsten des Dimers ein, wobei aufgrund dessen thermischer Dissoziation allerdings ein kleiner Restgehalt CIO erhalten bleibt.

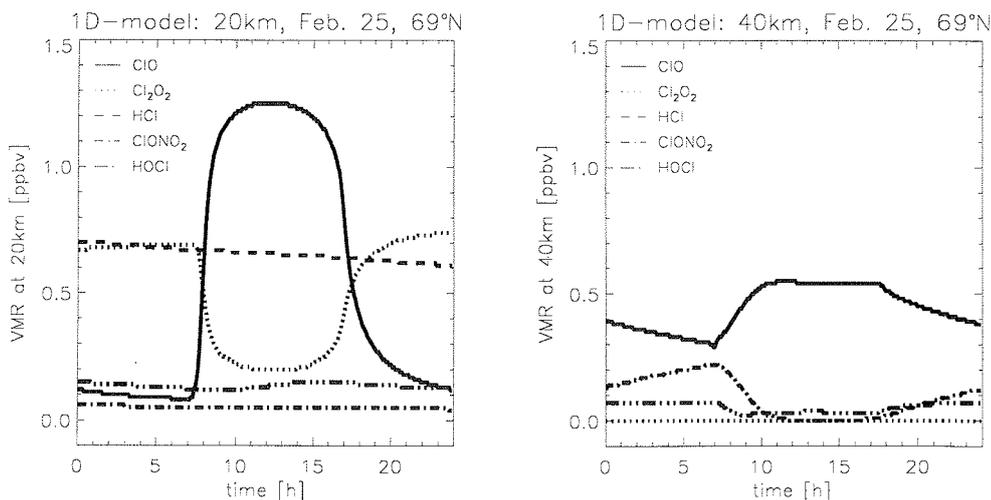


Abbildung 6.17: Ergebnisse eines eindimensionalen Modells für den Tagesgang der wichtigsten Chlorverbindungen bei 20 km und 40 km am 25. Februar bei 69°N. Das Modell wurde für eine typische Situation gestörter Chemie in den Polarregionen initialisiert und mit den üblichen Ratenkonstanten und Absorptionsquerschnitten nach [DeMore, 1994] betrieben. HCl hat bei 40 km im Vergleich zu den anderen Molekülen ein wesentlich größeres Mischungsverhältnis von etwa 2 ppbv und ist daher nicht abgebildet.

Zur Veranschaulichung des CIO-Tagesgangs in der unteren polaren Stratosphäre unter der Annahme einer Situation gestörter Chemie ist in Abbildung 6.17 (links) das Ergebnis eines eindimensionalen Modells für den Tagesgang der wichtigsten Chlorverbindungen bei einer Höhe von 20 km dargestellt. Die Modellrechnung wurde von Dr. Drew Shindell vom *NASA Goddard Institute for Space Studies, Columbia University, New York*, durch-

geführt. Genaue Beschreibungen des verwendeten Modells sind z.B. in [Shindell, 1995] oder [Shindell, 1996] zu finden. Diese und andere Modellrechnungen ergeben, daß ClO unter den Bedingungen der unteren Stratosphäre im Polarwirbel fast ausschließlich über den ClO-Dimer Zyklus kontrolliert wird und andere Zyklen, etwa der Chlornitratzyklus, nur eine vernachlässigbar kleine Rolle spielen. Der tägliche Auf- und Abbau einer ClO-Schicht in der unteren Stratosphäre im Höhenbereich um 20 km innerhalb des polaren Wirbels ist somit ein Kennzeichen des für den Ozonabbau im Polarwirbel hauptverantwortlichen katalytischen ClO-Dimer Zyklus. Die Überprüfung des Tagesganges von ClO bei 20 km stellt somit gewissermaßen einen Test für das Verständnis der Chemie des längerfristigen katalytischen Ozonabbaus in den Polarwirbeln dar.

Völlig anders ist die Situation in der oberen Stratosphäre bei einer Höhe von 40 km. Hier spielt der ClO-Dimer Zyklus aufgrund der höheren Temperaturen keine Rolle. In Abbildung 6.17 (rechts) ist auch für diese Höhe das Ergebnis des Modellaufs angegeben. Das Hauptnachtreservoir von ClO ist hier ClONO₂, zudem spielt auch HOCl noch eine Rolle. Neben den hier dargestellten Gasen sei noch OCIO mit einem kleinen Beitrag erwähnt [Trentmann, 1997]. Bei Sonnenaufgang werden die Nachtreservoirs photolytisch aufgespalten und es stellt sich ein Gleichgewicht ein, bei dem ClO ein Mischungsverhältnis von etwa 0.6 ppbv annimmt. Nach Sonnenuntergang erfolgt eine Rückbildung der Nachtreservoirs über die Reaktionen von ClO mit NO₂, HO₂ und BrO, wobei das Minimum der ClO-Konzentration erst kurz vor Sonnenaufgang erreicht wird.

Messungen des ClO-Tagesganges wurden erst in jüngster Zeit durch Fortschritte bei der Technologie bodengestützter Mikrowellenradiometer möglich [Shindell, 1996] [Riceaud, 1996]. Für die Datenanalyse der Messungen der im Millimeterwellenbereich nur sehr schwachen ClO-Linien werden zumeist Nachtspektren von den am Tag gemessenen Spektren abgezogen, um die bei diesen Radiometern typischen „Baseline“-Probleme in den Griff zu bekommen. Hierdurch werden die ClO-Signale bei 20 und 40 km natürlich um die Nacht-Werte reduziert, was insbesondere bei den verglichen zur Gesamtkonzentration nicht vernachlässigbar kleinen ClO-Nachtwerten in 40 km Höhe eine Rolle spielt. Daher wird der interessierende Bereich um die Linienmitte der zu subtrahierenden ClO-Nachtspektren oft durch ein Polynom ersetzt, welches an die äußere Baseline angepaßt wurde. [Riceaud, 1996] vergleicht seine mit dieser Methode erzielten ClO-Tagesgänge mit den Ergebnissen eines 3D-Modelles und erzielt eine recht gute Übereinstimmung mit den modellierten Tagesgängen im Höhenbereich zwischen 25 und 50 km. [Shindell, 1996] konzentriert sich bei seiner Analyse der während einer Situation gestörter Chemie im antarktischen Polarwirbel durchgeführten Messungen auf die untere Stratosphäre bei 20 km und kommt somit ohne die Methode des sogenannten „blanking and filling“ aus. Er findet eine gute Übereinstimmung seiner Messungen mit den Ergebnissen seines eindimensionalen Modells bei Verwendung der in [DeMore, 1994] angegebenen Reaktionsratenkonstanten. Der ClO-Tagesgang ist gemäß seiner Modellrechnungen recht unempfindlich gegenüber Änderungen der Dimerphotolyserate $J_{Cl_2O_2}$ und hängt somit vorwiegend von der

Dimerbildungsrate und der thermischen Dissoziationsrate des Dimers ab. Dies ermöglicht ihm aus seinen Messungen auf eine Reduzierung der von [DeMore, 1994] angegebenen Fehler um ca. 40% für die Dimerbildungsrate ($k_{(\text{ClO}+\text{ClO}+\text{M})}$) und um ca. 60% für die Gleichgewichtskonstante ($k_{(\text{ClO}+\text{ClO}+\text{M})}/k_{(\text{Cl}_2\text{O}_2+\text{M})}$) zu schließen.

Die hier beschriebenen Messungen bodengestützter Instrumente weisen eine zeitliche Auflösung von nur etwa einer Stunde auf. Das flugzeuggestützte SUMAS/ASUR-Instrument hingegen ist in der Lage, etwa alle 3 Minuten ein ClO-Profil zu messen. Die SUMAS/ASUR-Messungen stellen daher insbesondere für die Überprüfung der Modelle in der Übergangsphase zwischen Tag und Nacht eine wertvolle Bereicherung dar. Die SUMAS/ASUR-Messungen sind desweiteren ein guter Test für die Modellierung des ClO-Tagesganges sowohl in 20 als auch in 40 km Höhe, da hier absolute Mischungsverhältnisse im Gegensatz zu den häufig von bodengestützten Instrumenten gelieferten „Tag minus Nacht“-Profilen betrachtet werden können.

6.5.2 Planung und Durchführung der SUMAS/ASUR-Messungen

Während der Meßkampagne 1996 wurden zwei Flüge für die Messung des ClO-Tagesganges geplant und durchgeführt. Während die eine Messung der Erkundung des ClO-Abbaus beim Flug über die Tag-Nacht Grenze in die Dunkelheit diente, wurde beim zweiten Flug noch vor Morgengrauen gestartet um den Aufbau der ClO-Schicht bei einsetzender Photolyse des ClO-Dimers zu beobachten.

Die Messungen wurden in östlicher Flugrichtung bei ca. 68°-70° nördlicher Breite durchgeführt, sodaß aufgrund der Flugzeuggeschwindigkeit über Grund von etwa 700 km/h der Grenze zwischen Tag und Nacht mit ungefähr doppelter Geschwindigkeit begegnet wurde. Trotzdem konnten aufgrund der hohen Empfindlichkeit des SUMAS/ASUR-Empfängers im Vergleich zu den bodengestützten Instrumenten hohe zeitliche Auflösungen erzielt werden. Grund für die Auswahl der Flugrouten in west-östlicher Richtung war zum einen die Lage des Polarwirbels zum Zeitpunkt der Meßkampagne. Die Messungen sollten in einem aufgrund der hohen Geschwindigkeit des Forschungsflugzeuges möglichst homogenen Bereich des Polarwirbels erfolgen, da sie sich über große räumliche Bereiche erstrecken würden. Diese sollten zudem auf dem ersten Flugabschnitt vermessen werden. Zum anderen sollten die Messungen einen möglichst großen Sonnenzenitwinkelbereich abdecken, um einen sinnvollen Vergleich der gemessenen Daten mit einem photochemischen Modell zu ermöglichen und auf diese Weise die Gültigkeit der im Modell implementierten Reaktionsmechanismen zu überprüfen. Hierzu ist es notwendig, die maximalen ClO-Mischungsverhältnisse des Tages zu kennen, damit die Initialisierung des Modells hinsichtlich der Partitionierung von ClO_x gegenüber den Reservoirdgasen realistisch erfolgen kann. Neben den beiden geplanten Meßflügen wurde noch bei einem wei-

teren Flug von Spitzbergen nach Kiruna die Grenze zur Dunkelheit überflogen, welche aufgrund der geflogenen Route sehr langsam eintrat.

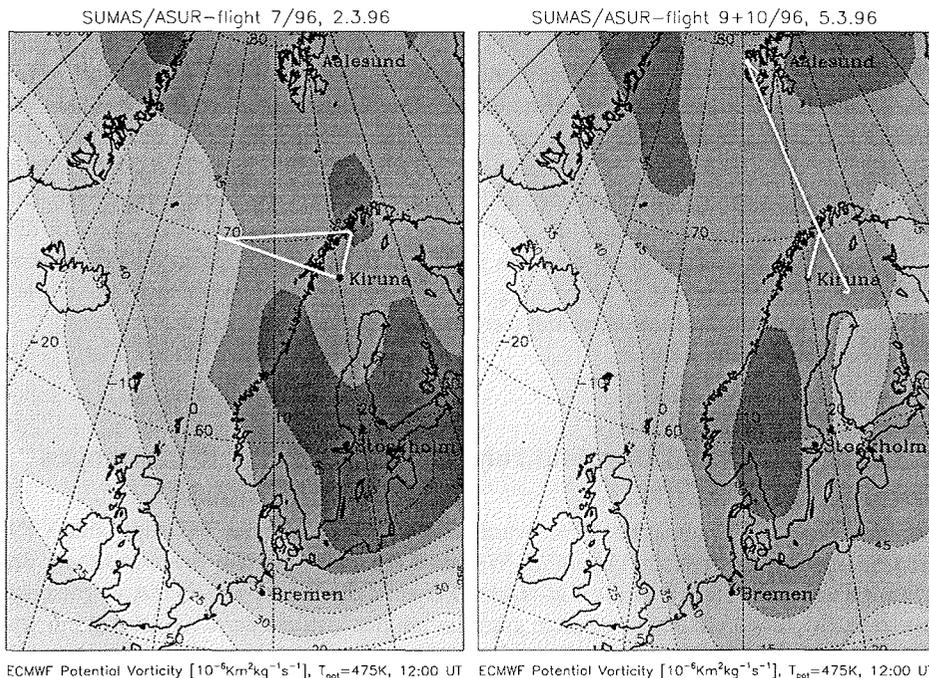


Abbildung 6.18: SUMAS/ASUR-Meßflüge zur Erkundung des CIO-Tagesganges. Links: Flug am 2.3.1996. Auf dem Rückflug in West-Ost-Richtung wurde früh morgens die Nacht-Tag-Grenze überflogen. Rechts: Flug am 5.3.1996 von Kiruna nach Spitzbergen. Beim Rückflug – die Flugrouten sind nahezu identisch – wurde in die Abenddämmerung hinein geflogen. Die ECMWF-PV bei 475 K ist in beiden Abbildungen für den jeweiligen Tag als Kontur dargestellt.

Abbildung 6.18 dient nun zunächst zur Veranschaulichung der Flugrouten und der Situation des Polarwirbels für den Flug im Morgengrauen des 2.3.1996 (links) sowie beim Rückflug aus Spitzbergen am 5.3.1996 (rechts). Die Flugroute des am 25.2.1996 durchgeführten Fluges in die Dunkelheit wurde bereits in Abschnitt 6.2.6 in Abbildung 6.9 dargestellt. Am 25.2.1997 wurde schließlich noch ein weiterer Flug vom Tag in die Nacht durchgeführt. Die Flugroute dieses Meßfluges sowie die vorherrschende Situation des Polarwirbels sind in Abbildung 6.19 zu finden.

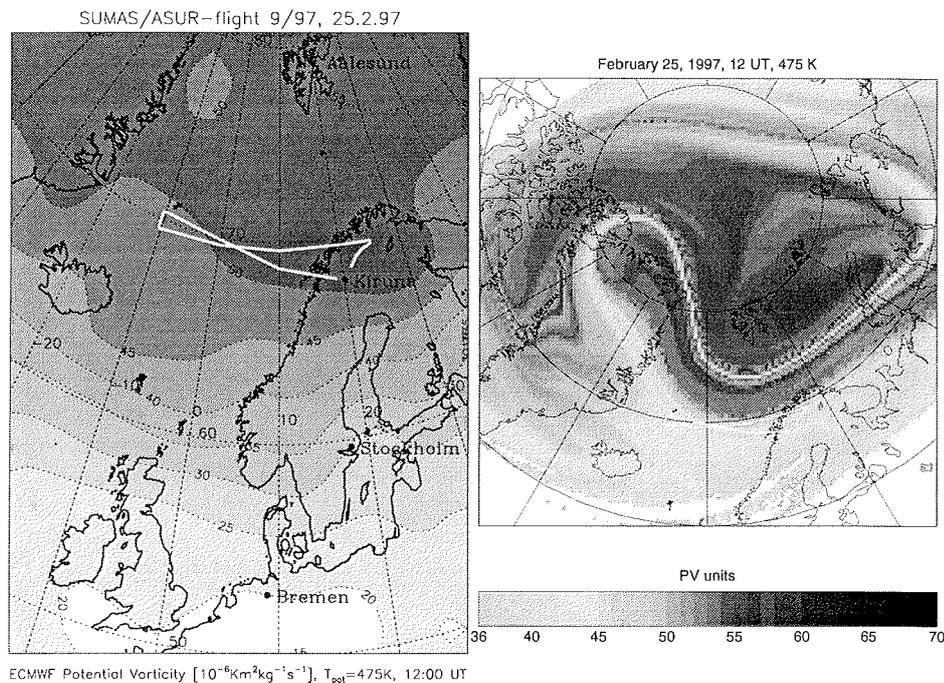


Abbildung 6.19: SUMAS/ASUR-Meßflug vom 25.2.1997 innerhalb des Polarwirbels. Der Flug wurde so konzipiert, daß auf dem ersten Teil in westlicher Richtung ein nahezu konstanter Sonnenzenitwinkel von ca. 82° sowie eine nahezu konstante PV aus dem 475 K-Niveau gewährleistet war. Auf dem Flugabschnitt in östliche Richtung wurde die Tag-Nacht Grenze überflogen. Links: Darstellung der Flugroute unterlegt mit ECMWF-Daten der 475 K- PV. Rechts: Hochoaufgelöste Darstellung des Polarwirbels durch Rückwärtstrajektorienrechnung gemäß [Sinnhuber *et al.*, 1996].

Darstellung der Messungen

Die bei den vier Flügen bestimmten CIO-Profile sollen jetzt in Abhängigkeit des Sonnenzenitwinkels dargestellt werden.

Abbildung 6.20 zeigt zunächst die Konturdarstellung der CIO-Messungen vom 2.3.1996 beim Flug aus der Nacht in den Tag. Die Messungen decken bezüglich des Sonnenzenitwinkels am Boden einen Bereich zwischen 87° und 97° ab. Hierbei werden bei Sonnenzenitwinkeln größer als etwa 95° CIO-Mischungsverhältnisse von nur etwa 0.1-0.3 ppbv in 20 km Höhe festgestellt. Mit steigender Sonne bildet sich schließlich ein CIO-Peak von maximal etwa 1.3 ppbv als Indikator für den in dieser Höhe ablaufenden CIO-Dimer Zyklus. In der oberen Stratosphäre wächst das CIO-Mischungsverhältnis bei 40 km in der

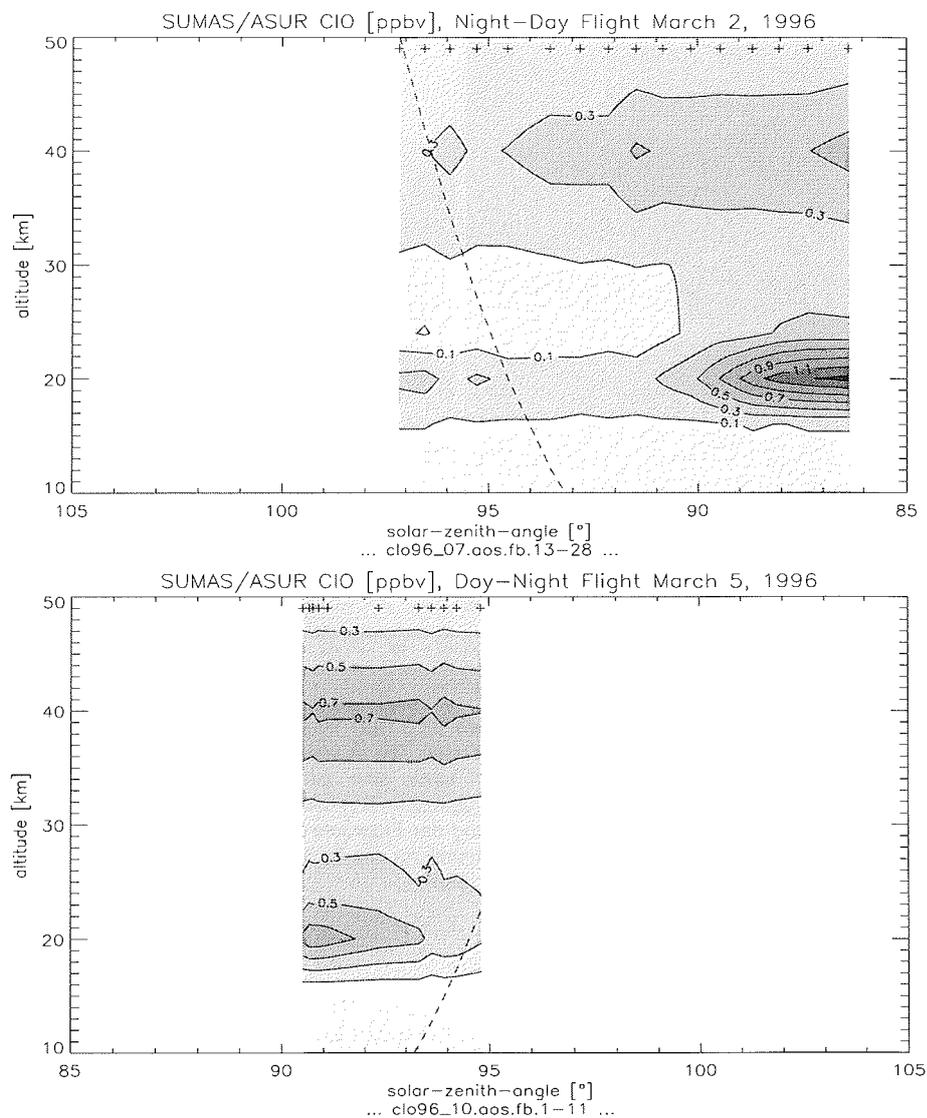


Abbildung 6.20: Oben: Änderung der CIO-Mischungsverhältnisse bei Sonnenaufgang. Messung vom 2.3.1996 bei einem Flug über die Nacht-Tag Grenze. Unten: CIO-Mischungsverhältnisse aufgetragen gegen Höhe und Sonnenzenitwinkel. Die Messungen wurden am 5.3.1996 beim Rückflug von Spitzbergen nach Kiruna bei Eintreten der Dunkelheit durchgeführt. Die Einzelmessungen sind als Kreuze unter dem oberen Rand der Darstellungen angedeutet, desweiteren ist der geometrische Erdschatten über die Höhe als gestrichelte Linie eingezeichnet.

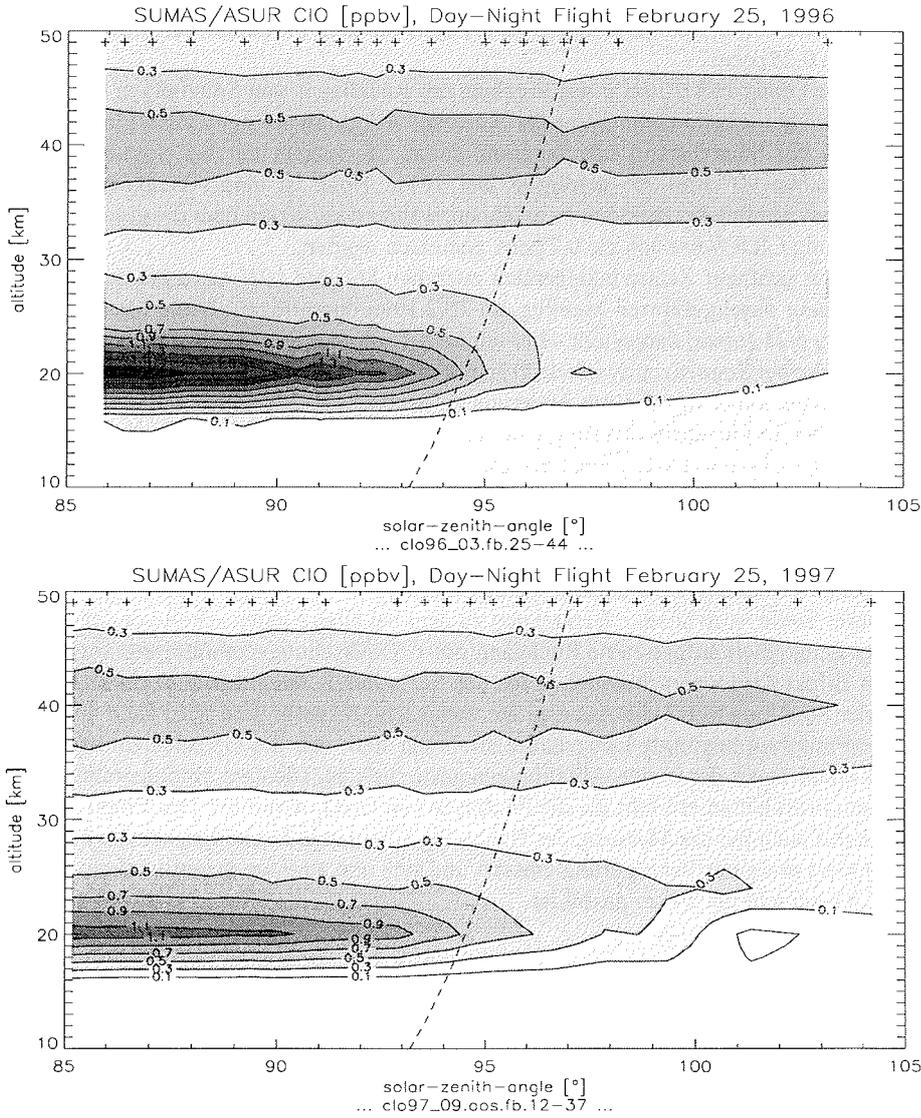


Abbildung 6.21: Oben: Konturdarstellung der am 25.2.1996 beim Flug in die Abenddämmerung gemessenen CIO-Profile gegen die Höhe und den Sonnenzenitwinkel am Boden. Der geometrisch daraus berechnete Erdschatten ist als gestrichelte Linie angedeutet. Unten: Darstellung der Ergebnisse für den Meßflug vom 25.2.1997. Die Messungen wurden bei einer östlichen Flugrichtung ungefähr auf dem 69. Breitengrad durchgeführt. Die Sonnenzenitwinkel der einzelnen Profile sind als Kreuze unter dem oberen Rand der Darstellungen angegeben.

gleichen Zeit von 0.1-0.3 ppbv auf etwa 0.5 ppbv an. Der 1σ -Fehler der Messungen beträgt etwa 0.25 ppbv.

Die untere Grafik in 6.20 zeigt das Ergebnis des Rückfluges von Spitzbergen nach Kiruna während der Abenddämmerung des 5.3.1996. Aufgrund der gewählten Flugroute änderte sich der Sonnenstand sehr langsam, sodaß Messungen nur bei Sonnenzenitwinkeln zwischen 90° und 95° erfolgten. Bei 20 km Höhe ist eine Abnahme des ClO-Mischungsverhältnisses dennoch zu erkennen, während bei 40 km über die gesamte Dauer der Messung ClO-Werte von ca. 0.7 ppbv gemessen werden.

Ein weitaus größerer Zenitwinkelbereich zwischen 86° und 103° wird bei dem in östliche Richtung durchgeführten Meßflug am 25.2.1996 durchflogen. Diese Messung ist in Abbildung 6.21 (oben) dargestellt. Hier wird ein deutlicher ClO-Rückgang in der unteren Stratosphäre bei Sonnenzenitwinkeln größer als 90° festgestellt. In der oberen Stratosphäre ist indessen keine signifikante Änderung zu beobachten, allerdings liegt lediglich eine Messung bei Sonnenzenitwinkeln größer als 99° vor.

Letztendlich ist noch das Ergebnis des am 25.2.1997 durchgeführten Meßflugs in Abbildung 6.21 (unten) zu finden, wobei im Prinzip der gleiche Verlauf wie bei der Messung des Jahres 1996 festzustellen ist. Allerdings wurde 1997 noch bei etwas höheren Sonnenzenitwinkeln gemessen, sodaß auch in 40 km Höhe ein leichter Rückgang des ClO-Mischungsverhältnisses beobachtet werden konnte.

An dieser Stelle ist noch eine Bemerkung zu dem bei allen Flügen schon vor dem Eintreten der Dunkelheit aufgetretene Rückgang des ClO-Mischungsverhältnisses angebracht. Dieser Effekt wird wahrscheinlich durch den bei hohen Sonnenzenitwinkeln sehr langen Weg der Strahlung durch die Atmosphäre verursacht. Insbesondere wird dann die für die Dimer-Photolyse benötigte kurzweilige Strahlung stark von der Ozonschicht absorbiert, sodaß schon bevor der in den Abbildungen gestrichelt angedeutete, rein geometrisch berechnete Erdschatten erreicht ist, die Photolyse von Cl_2O_2 abnimmt. Der Effekt läßt sich umgekehrt auch bei der Messung des Nacht-Tag Übergangs feststellen, wo die Photolyse des Dimers mit einer Verzögerung einsetzt und sich erst ab Sonnenzenitwinkeln von 90° eine ClO-Schicht bei 20 km ausbildet.

6.5.3 Vergleich mit 1D-Modell

Auswahl der Messungen

Die Wichtigkeit einer homogenen Wirbelsituation für die Analyse der Messungen bei 20 km wurde bereits betont. In Abbildung 6.22 sind daher die auf dem Hinflug entlang der Flugstrecke gemessenen ClO-Mischungsverhältnisse bei 20 km in Abhängigkeit der geographischen Koordinaten dargestellt. Zunächst ist oben der Flug im Morgengrauen vom 2.3.1996 gegen die geographische Länge dargestellt. Auf der Flugstrecke in östlicher Richtung durch die Nacht werden sehr geringe ClO-Mischungsverhältnisse zwischen

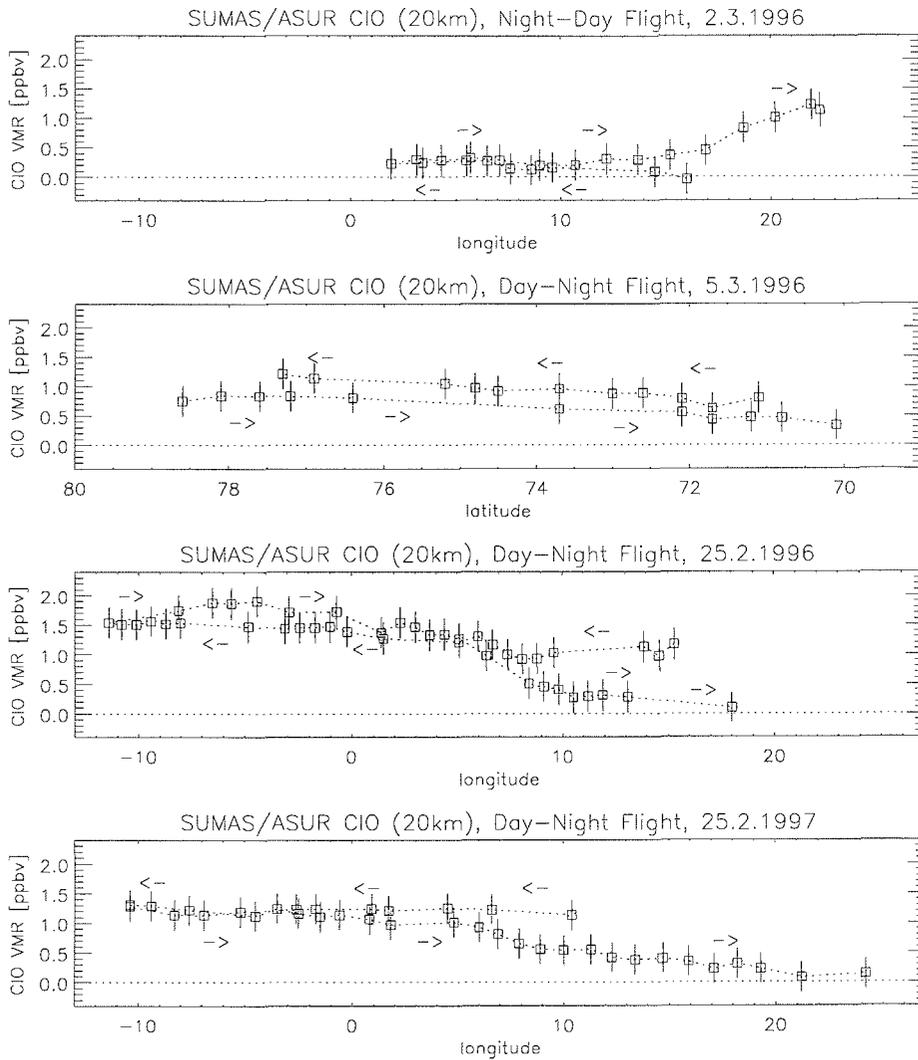


Abbildung 6.22: SUMAS/ASUR Messungen bezüglich des CIO-Tagesganges bei einer Höhe von 20 km aufgetragen gegen geographische Länge oder Breite. Oben: Flug im Morgengrauen über die Nacht-Tag Grenze vom 2.3.1996 in östlicher Flugrichtung. Die CIO-Mischungsverhältnisse bei 20 km sind gegen die geographische Länge aufgetragen. Darunter: Flug fast parallel zur Tag-Nacht-Grenze auf dem Rückflug von Spitzbergen am 5.3.1996, aufgetragen gegen die geographische Breite. 2. von unten: Flug ostwärts in die Abenddämmerung am 25.2.1996, CIO bei 20 km dargestellt gegen die geographische Länge. Unten: Verbessertes Flug in östliche Richtung über die Tag-Nacht-Grenze bei wesentlich homogenen Bedingungen vom 25.2.1997. Die jeweiligen Flugrichtungen sind durch Pfeile angedeutet.

0 und 0.3 ± 0.25 ppbv festgestellt. Auch nach der Wende wird zunächst noch kein ClO gebildet, bevor bei etwa 12° östlicher Breite die Photolyse des Dimers einzusetzen beginnt und kurz vor Flugende maximale Werte von ca. 1.2-1.3 ppbv erreicht werden.

Die zweite Grafik beschreibt den Verlauf der Meßflüge von Kiruna nach Spitzbergen und zurück. Hier fällt insbesondere der Anstieg des ClO Mischungsverhältnisses in Richtung Norden auf. Auf dem Rückweg fällt das Mischungsverhältnis in etwa gleich stark ab, wie es auf dem Hinweg zugenommen hatte. Die aufgrund der langsamen Zunahme des Sonnenzenitwinkels erwartete Abnahme des ClO-Mischungsverhältnisses kann nicht von dem auf dem Hinflug festgestellten ClO-Gradienten unterschieden werden. Der Absolutwert des Mischungsverhältnisses bei 20 km ist auf dem Rückflug allerdings kleiner, da der Sonnenzenitwinkel in der Zwischenzeit von etwa 78° auf 90° gestiegen ist. Aufgrund des auf dem Hinflug im Vortex gemessenen ClO-Gradienten und der insgesamt nur einen kleinen Sonnenzenitwinkelbereich abdeckenden Messung in der Abenddämmerung ist dieser Meßflug für den Vergleich mit einem photochemischen Modell weniger geeignet.

Die nächste Grafik stellt den am 25.2.1996 durchgeführten Meßflug gegen die Länge dar. Zunächst wurde auch hier – die Flugstrecke in westliche Richtung wurde ja schon in Abschnitt 6.2.6 ausführlich diskutiert – trotz einer stabilen Wirbelsituation eine beständige Zunahme des ClO-Mischungsverhältnisses in Richtung Westen beobachtet. Nach der Wende werden statt der erwarteten Abnahme zunächst lokal sehr hohe ClO-Mischungsverhältnisse von an die 1.9 ppbv gemessen, bevor bei etwa 0° -Länge bei Erreichen der Tag-Nacht Grenze das ClO-Mischungsverhältnis aufgrund der abnehmenden Sonneneinstrahlung rasch abfällt. Das nur lokal aufgetretene ClO-Maximum erschwert die Datenanalyse erheblich, da eine Abschätzung der Chloraktivierung aus den Reservoirgasen durch die auf dem Hinflug durchgeführten Messungen damit sehr zweifelhaft wird. Die Meßergebnisse von Hin- und Rückflug widersprechen sich offenkundig, obwohl die Entfernung nur etwa 50 km zwischen den jeweils gemessenen Luftmassen ausmacht. Auch konnten keine instrumentellen Effekte identifiziert werden, die für den beobachteten Effekt verantwortlich sein könnten.

Aufgrund der bei dieser Messung gemachten Erfahrungen, wurde am 25.2.1997 ein weiterer Meßflug mit Hilfe von Trajektorienrechnungen für das zu vermessende Luftvolumen geplant und verwirklicht, der zu einem weitaus homogeneren Meßergebnis führte. Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 6.22 ganz unten dargestellt und zeigt den gewünschten Verlauf eines konstanten ClO-Mischungsverhältnisses auf der Flugstrecke in östlicher Richtung und dem Abfall nach der Wende wenn der Sonnenzenitwinkel schnell zunimmt. Die optimierte Route dieses Fluges und die Situation des Polarwirbels sind in Abbildung 6.19 zu finden. Die ungewöhnliche Flugstrecke wurde gewählt, da einerseits das SUMAS/ASUR-Instrument die 20 km ClO-Schicht in einem Abstand von etwa 40 km links der Flugstrecke beobachtet, andererseits die Windverhältnisse bei 475 K die Luft in nord-östliche Richtung trieben. Zusätzlich ist eine hochaufgelöste PV-Karte abgebildet, aus der die Strömungsverhältnisse im Polarwirbel besser zu ersehen sind.

Für den Vergleich der Messungen bei 20 km Höhe mit der Simulation eines chemischen Modells werden aus den in diesem Abschnitt beschriebenen Gründen die Messungen vom 2.3.1996 und 25.2.1997 ausgewählt.

Modellvergleich bei 20 km

Die Messungen des SUMAS/ASUR-Empfängers bezüglich des ClO-Tagesganges sollen jetzt mit einem 1D-Modell verglichen werden. Hierzu wurden die Ergebnisse des in [Shindell, 1996] beschriebenen Modells verwendet, welche schon in Abbildung 6.17 für den 25. Februar gegen die Zeit dargestellt wurden. Das photochemische Modell verfügt über die üblichen chemischen Reaktionen und eine Parametrisierung der heterogenen Chemie. Das Strahlungsfeld wird in einer sphärischen Atmosphäre bei Verwendung einer für große Sonnenzenitwinkel genauen Methode [Toon *et al.*, 1989] berechnet. Für die Reaktionskonstanten und Absorptionsquerschnitte wurden bei dem hier dargestellten Modellauf die in [DeMore, 1994] angegebenen Werte verwendet. Um dem Modell ausreichend Zeit zu geben in ein chemisches Gleichgewicht zu gelangen, wurde der Modellauf schon für den 23. Februar mit Modellprofilen für eine typische Situation gestörter Chemie im Polarwirbel initialisiert.

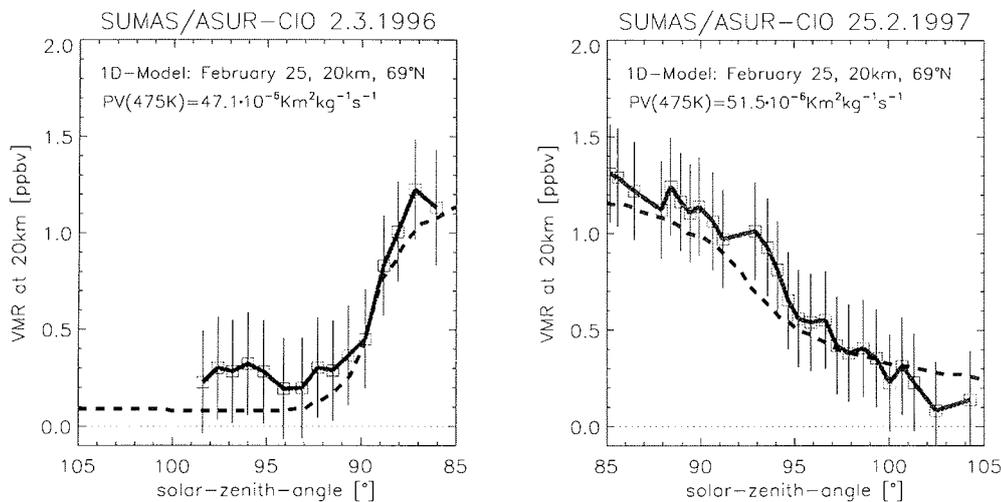


Abbildung 6.23: Vergleich der SUMAS/ASUR ClO-Messungen im Morgengrauen sowie in der Abenddämmerung bei einer Höhe von 20 km mit den Ergebnissen eines 1D-Modells. Links: Messung vom 2.3.1996 bei Sonnenaufgang. Rechts: Messung vom 25.2.1997 beim Flug in die Dunkelheit. Das Modell wurde in beiden Fällen für eine typische Situation gestörter Chemie in den Polarregionen initialisiert, dargestellt sind die Ergebnisse für den 25. Februar bei 69° nördlicher Breite.

Abbildung 6.23 zeigt nun den Vergleich der vom SUMAS/ASUR-Instrument bestimmten 20 km-Mischungsverhältnisse mit den Ergebnissen des Modellaufs. In der linken Grafik ist dabei die Messung im Morgengrauen des 2.3.1996 dargestellt, während auf der rechten Seite die am 25.2.1997 durchgeführte Messung in der Abenddämmerung zu sehen ist. Zusätzlich ist die potentielle Vorticity auf der 475 K-Isentropenfläche angegeben. Beide Messungen wurden bei relativ hohen PV-Werten im Polarwirbel durchgeführt, sodaß mit hohen ClO-Tageswerten gerechnet werden konnte. Diese wurden mit ca. 1.3 ppbv auch erreicht. Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen die Modellergebnisse mit den Messungen gut überein. Hierbei ist deutlich der durch die einsetzende Dimer-Photolyse verursachte steilere Anstieg am Morgen gegenüber dem nur schwachen Abfall am Abend, wenn ClO gemäß der Bildungsreaktion für den Dimer abgebaut wird, zu erkennen. Die Messung zeigt eine hohe Variabilität verglichen mit dem glatten Modellergebnis, welche wahrscheinlich auf die räumliche Variabilität entlang der Flugstrecke zurückzuführen ist. Insbesondere werden vor dem Sonnenaufgang am 2.3.1996 systematisch höhere Mischungsverhältnisse gemessen, während nach dem Sonnenuntergang am 25.2.1997 geringere Werte festgestellt werden. Diese Abweichungen systematischer Natur bewegen sich aber immer noch im Bereich der Fehlergrenzen der Messung.

Modellvergleich bei 40 km

Der ClO-Tagesgang bei 40 km ist unabhängig von der Situation des Polarwirbels. Daher können für den Modellvergleich hier auch die Messungen vom 25.2.1996 verwendet werden, die sich im übrigen in dieser Höhe nicht signifikant von den Messungen am 25.2.1997 unterscheiden. Der Modellvergleich ist – wieder für die Messungen am Morgen bzw. am Abend – in Abbildung 6.24 dargestellt. Generell ergeben die Messungen höhere Mischungsverhältnisse als das Modellergebnis. Ursache hierfür kann die Repräsentation der Messung durch nur eine Stützstelle bei 40 km sein. Ein über die Höhe breites ClO-Maximum würde diesen Effekt erzeugen. Der über den Zeitraum der Messungen nur schwach ausgeprägte ClO-Tagesgang wird vom Modell im Rahmen der Meßfehler im wesentlichen nachvollzogen, wobei deutlich der durch die einsetzende Photolyse der Chlornachtreservoirs ClONO_2 , HOCl und OCIO verursachte steilere Anstieg am Morgen gegenüber dem langsamen Abfall am Abend aufgrund der Reaktionen von ClO mit NO_2 , HO_2 und BrO unterschieden werden kann.

Schlußfolgerung

Die SUMAS/ASUR-Messungen bestätigen somit im Rahmen des Meßfehlers die Reaktionskonstanten von [DeMore, 1994] für den ClO-Dimer Zyklus in der unteren Stratosphäre bei 20 km, was eine Grundvoraussetzung für das Verständnis des Ozonabbaus unter Ozonloch-Bedingungen in den winterlichen Polarwirbeln darstellt. Dieses Ergebnis ist

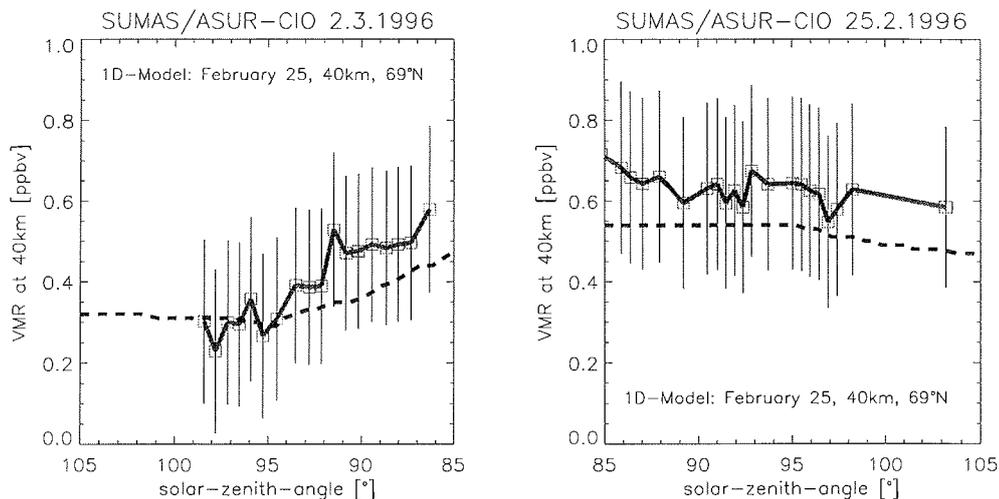


Abbildung 6.24: Vergleich der SUMAS/ASUR CIO-Messungen im Morgengrauen sowie in der Abenddämmerung bei 40 km mit den Ergebnissen eines 1D-Modells. Links: Messung vom 2.3.1996 bei Sonnenaufgang. Rechts: Messung vom 25.2.1996 beim Flug in die Dunkelheit. Das Modell wurde in beiden Fällen für eine typische Situation gestörter Chemie in den Polarregionen initialisiert, dargestellt sind die Ergebnisse für den 25. Februar bei 69° nördlicher Breite.

konsistent mit dem von [Shindell, 1996] berichteten Befund für die Antarktis.

In der oberen Stratosphäre bei einer Höhe von 40 km ergeben die Messungen trotz der im Vergleich zum Tagesgang großen Fehler den gleichen Verlauf wie die Modellsimulation, wengleich systematisch höhere Mischungsverhältnisse gemessen wurden.

Eine vorsichtige Anpassung des Modells an die SUMAS/ASUR-Messungen könnte insbesondere in der unteren Stratosphäre zu einem quantitativen Ergebnis für die in [DeMore, 1994] angegebenen Reaktionskonstanten des CIO-Dimer Mechanismus und deren Fehler führen. Für die Analyse wäre dann eine genauere Initialisierung des Modells mit den vom SUMAS/ASUR-System gemessenen Profilen notwendig, um die Chloraktivierung zum Zeitpunkt der Messung, d.h. das für den CIO-Dimer-Zyklus zur Verfügung stehende Chlor, genauer zu modellieren.

6.6 Zusammenfassung: Meßkampagnen und Ergebnisse

In diesem Kapitel wurden die Ergebnisse der SUMAS/ASUR-Messungen der Jahre 1996 und 1997 dargestellt. Schwerpunkt des Kapitels bildete dabei die Interpretation der im Februar und März 1996 durchgeführten Meßflüge.

Nachdem zunächst die Ergebnisse der vorangegangenen Kampagnen kurz umrissen wurden, folgte eine Beschreibung der für die chemischen Prozesse in der arktischen Stratosphäre wichtigen meteorologischen Bedingungen des außergewöhnlich kalten Winters 1995/96 sowie eine Einordnung und Darstellung der SUMAS/ASUR-Meßkampagne vom 22.2. bis 6.3.1996 in diesen Zusammenhang. Die wichtigsten Ergebnisse der Messungen seien an dieser Stelle kurz aufgelistet:

- Es wurden sehr hohe ClO-Mischungsverhältnisse im arktischen Polarwirbel mit Spitzenwerten von an die 2.0 ± 0.25 ppbv in der unteren Stratosphäre festgestellt. Die gemessenen Spitzenwerte weisen auf eine nahezu vollständige Chloraktivierung hin.
- Gleichzeitig wurden sehr geringe Mischungsverhältnisse des Reservoirgases HCl unterhalb etwa 24 km beobachtet.
- Die hohe Empfindlichkeit des SUMAS/ASUR-Empfängers erlaubte eine Untersuchung der kleinräumigen Variabilität von ClO und HCl innerhalb und am Rande des Polarwirbels. Neben einer hohen ClO-Variabilität konnte sowohl innerhalb als auch am Rande des Polarwirbels eine deutliche Antikorrelation von ClO und HCl beobachtet werden.
- Die niedrigen vom SUMAS/ASUR-Instrument gemessenen HCl-Mischungsverhältnisse unterstützten ferner die von [Rex *et al.*, 1997] hervorgebrachte These der „Chlornitratfalle“, mit der ein von Ozonsondenmessungen beobachteter Rückgang der Ozonabbaurate ab Mitte Februar 1996 erklärt werden kann. Hierbei wird angenommen, daß eine effektive Chloraktivierung über die schnelle heterogene Reaktion von ClONO_2 mit HCl an PSC's nicht mehr möglich ist, wenn HCl bereits fast vollständig verbraucht ist.
- Die Gegenüberstellung der Messungen mit den Ergebnissen eines dreidimensionalen chemischen Transportmodells (SLIMCAT) der Universität Cambridge ergab folgende Resultate:
 - Es wurde eine generell sehr gute Übereinstimmung für ClO gefunden. Nur in einem Fall wurde eine große Diskrepanz festgestellt, als im Modell offenbar der für die heterogene Chemie verantwortliche Mechanismus deaktiviert wurde. Dieser Modellmechanismus hängt offenbar sehr kritisch von der Temperatur ab.
 - Für HCl ergab der Modellvergleich eine systematische Abweichung der Messung zu höheren Werten im Höhenbereich von etwa 35-50 km, eine gute Übereinstimmung im mittleren Bereich der Stratosphäre, sowie sehr geringe Mischungsverhältnisse im Modell- wie im Meßergebnis unterhalb 24 km.

- Eine Bestätigung der Modellergebnisse im Rahmen der Fehlergrenzen wurde auch für Ozon gefunden, wobei das Modell lediglich oberhalb 30 km systematisch zu kleine Werte ergab.
- Im Falle des langlebigen Spurengases N_2O wurden verglichen mit den Messungen etwas zu kleine N_2O -Mischungsverhältnisse innerhalb des Polarwirbels modelliert.
- Bei einem Meßflug wurden erstmals Schnitte aller vier Spurengase über den Rand des Polarwirbels bei ungefähr den gleichen geographischen Positionen gemessen. Hierbei wurde insbesondere der Effekt des Absinkens der Luft im Polarwirbel verdeutlicht. Während sich das ClO-Maximum von 24 km am äußeren Wirbelrand auf eine Höhe von 20 km im Wirbelinneren veränderte – dieses Ergebnis wird bestätigt durch die N_2O -Beobachtungen vom gleich Flug – wurden die chemischen Ozon- und HCl-Verluste im Wirbelinneren durch den Transport Ozon- bzw. HCl-reicher Luftmassen von oben überdeckt.
- Eine Korrelationsanalyse mittels des konservativen „Tracers“ N_2O gestattet jedoch eine Zuordnung zwischen den Messungen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels. Hierdurch konnte ein chemischer Ozonverlust im Polarwirbel von 2.0 ± 0.7 ppmv bei 100 ppbv N_2O (ungefähr 20 km im Vortex) zum Zeitpunkt der 96er-Kampagne im Vergleich zu knapp außerhalb des Wirbels gemessenen Referenzwerten ermittelt werden. Für HCl beliefen sich die Verluste auf ca. 0.9 ± 0.3 ppbv in gleicher Höhe. Die Ergebnisse sind konsistent mit anderen Beobachtungen [Rex *et al.*, 1997] [Müller *et al.*, 1997].

Nach der ausführlichen Darstellung der 1996 durchgeführten Messungen wurde kurz auf den erst ab Mitte Februar in der unteren Stratosphäre sehr kalt gewordenen Winter 1997 eingegangen. Hier wurde vom SUMAS/ASUR-System eine ähnlich ausgeprägte Chloraktivierung gegen Ende Februar wie im Vorjahr festgestellt.

Im letzten Teil dieses Kapitels erfolgte schließlich die Darstellung und Interpretation der SUMAS/ASUR-Messungen bezüglich des Tagesganges von ClO. Die zeitlich hochaufgelösten Messungen wurden mit den Ergebnissen eines eindimensionalen photochemischen Modells verglichen. Hierbei konnten die im Modell verwendeten Reaktionskonstanten im Rahmen der Fehlergrenzen im wesentlichen bestätigt werden, wenngleich eine genaue quantitative Analyse noch aussteht.

Teil III

Kapitel 7

2513-2533 GHz: Das SUMAS/THOMAS-Radiometer

Im letzten Kapitel der Arbeit soll auf die Weiterentwicklung der Heterodyntechnologie in den Terahertzbereich eingegangen werden. Hierzu wurde in den Jahren 1993 und 1994 im Rahmen einer Zusammenarbeit mit dem Institut für Optoelektronik der Deutschen Forschungsanstalt für Luft und Raumfahrt (DLR) die Entwicklung eines flugzeuggetragenen Radiometers zur Messung eines Rotationsübergangs des Hydroxylradikals bei 2514 GHz betrieben. Das OH-Molekül, welches für die Chemie in der Atmosphäre aufgrund seiner hohen Reaktivität eine Schlüsselrolle einnimmt und auch als das „Waschmittel der Atmosphäre“ bezeichnet wird, besitzt seine ersten Rotationsübergänge im Terahertzbereich bei 1.8 und 2.5 THz. Im Jahre 1994 konnten schließlich zwei Meßflüge mit dem SUMAS/THOMAS¹-System durchgeführt und das OH-Radikal in der Atmosphäre erstmals mit einem Heterodynsystem detektiert werden. Zudem wurde eine Wasserdampflinie bei 2531 GHz gemessen. Beim THOMAS-Radiometer handelt es sich um die Weiterentwicklung eines für astronomische Messungen bei 2.5 THz eingesetzten Schottky-Dioden-Empfängers mit quasi-optischer Strahleinkopplung. Als Lokaloszillator des im Doppelseitenbandmodus betriebenen ungekühlten Empfängers dient ein optisch gepumpter Moleküllaser. Die Messungen wurden aufgrund der hohen WasserdampfabSORPTION im Submillimeterwellenbereich von Bord des Forschungsflugzeuges FALCON der DLR durchgeführt. Nach einem ersten erfolgreichen Meßflug im Juni 1994 konnte im September 1994 eine deutliche Systemverbesserung erzielt werden [Titz *et al.*, 1995 (a)] [Titz *et al.*, 1995 (b)].

¹ Submillimeter Atmospheric Sounder / Terahertz Radiometer for OH Measurements in the Atmosphere

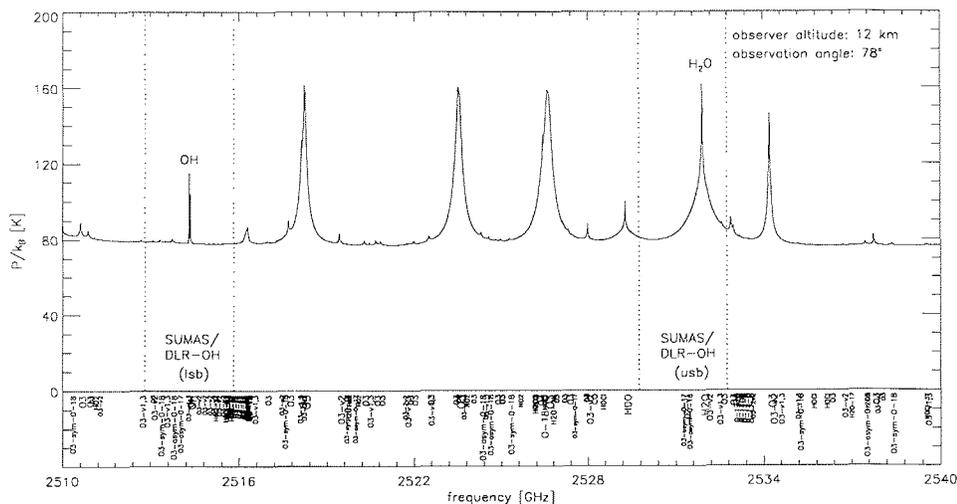


Abbildung 7.1: Modellrechnung für den SUMAS/THOMAS-Spektralbereich zwischen 2510 und 2540 GHz für einen Beobachtungszenitwinkel von 78° bei 12 km Flughöhe. Auch im Terahertzbereich wird das Spektrum durch zahlreiche Ozonübergänge dominiert.

7.1 Motivation

Als Mitglied der HO_x -Familie spielt das OH-Molekül eine wichtige Rolle für die katalytischen Ozonabbauzyklen (siehe Abschnitt 1.2.2). Neben seiner direkten Wirkung im HO_x -Zyklus bewirkt OH überdies eine Kopplung der verschiedenen Zyklen untereinander und ist insbesondere für die Radikalaktivierung und -deaktivierung der ClO_x - und NO_x -Zyklen wichtig (siehe auch Abschnitt 1.2.4).

OH wird in der mittleren und oberen Stratosphäre hauptsächlich über die Reaktion atomaren Sauerstoffs $\text{O}(^1\text{D})$ mit Wasserdampf gebildet. Quellgase in der unteren Stratosphäre sind zudem CH_4 , HNO_3 und H_2O . Senke von OH ist vor allem H_2O . Trotz seiner Bedeutung für die atmosphärische Chemie bleibt das Hydroxylradikal eines der am seltensten gemessenen Gase. Ballon- oder flugzeuggestützte in-situ Methoden gestatten OH-Messungen mit hoher Empfindlichkeit [Stimpfle, 1990] [Salawitch *et al.*, 1994]. Die Kalibration dieser zumeist auf Resonanzfluoreszenz im ultravioletten Spektralbereich beruhenden Methoden ist jedoch schwierig. In-situ Instrumente sind zudem auf die Position des Trägers beschränkt.

Fernerkundungssensoren wurden für unterschiedliche Träger und Spektralbereiche entwickelt. So kam das MAHRSI/CHRISTA²-Experiment, ein für die Messung der glo-

²Middle Atmosphere High Resolution Spectrograph Investigation/ Cryogenic Infrared Spectrometers and Telescopes for the Atmosphere

balen Verteilung des Hydroxylradikals in der Mesosphäre geeignetes UV-Spektrometer, während einer Space-Shuttle Mission zum Einsatz [Conway *et al.*, 1996]. Bodengestützte Messungen der OH-Säulendichte mit einem Fabry-Perot Spektrometer im ultravioletten Spektralbereich wurden von [Burnett & Burnett, 1996] berichtet. Der für Fernerkundungsmessungen günstigste Spektralbereich ist jedoch das ferne Infrarot, wo starke Rotationslinien von OH zu finden sind. Hier sind im wesentlichen drei instrumentelle Methoden konkurrenzfähig. Ballongestützte Fouriertransformspektrometer zur Messung der OH-Emissionslinien bei 3.5 THz wurden von [Chance *et al.*, 1996] und [Park & Carli, 1991] entwickelt. Inzwischen wurden Fouriertransformspektrometer auch auf dem russischen Stratosphärenflugzeug GEOPHYSIKA eingesetzt [Carli *et al.*, 1993]. Desweiteren berichten [Pickett & Peterson, 1996] über OH-Messungen mit einem ballongestützten Fabry-Perot-Interferometer bei 3.0 und 3.5 THz. Dritte Methode ist die in dieser Arbeit beschriebene 2.5 THz-Heterodyntechnologie. Heterodynsysteme haben den Vorteil einer hohen Auflösung (1-2 MHz) im Vergleich zu den anderen beiden Methoden (50-100 MHz), was eine vollständige spektrale Auflösung des druckverbreiterten OH-Tripletts bei 2.5 THz und damit eine Trennung der Beiträge aus verschiedenen Höhenbereichen erlaubt. Im Gegensatz zum Heterodyninstrument sind Meßsysteme mit geringerer Auflösung auf einen oberhalb des zu untersuchenden Atmosphärenbereichs fliegenden Träger angewiesen, da die Höheninformation nur aus dem schrittweise Abtasten des Atmosphärenrandes („Limb-Sounding“) gewonnen werden kann. In den folgenden Abschnitten sollen nun der Aufbau des 1994 zum ersten Mal geflogenen Heterodynexperiments beschrieben und die Ergebnisse der Messungen präsentiert werden.

7.2 Aufbau des SUMAS/THOMAS-Experiments

Das SUMAS/THOMAS-Experiment wurde in einer Zusammenarbeit des Instituts für Umweltphysik der Universität Bremen mit dem Institut für Optoelektronik der DLR in Oberpfaffenhofen aufgebaut. Das THOMAS-Frontend entstand dabei am Institut für Optoelektronik durch die Weiterentwicklung eines zuvor erfolgreich für astronomische Messungen auf dem Kuiper-Airborne-Observatory eingesetzten 2.5 THz-Radiometers des Max-Planck-Instituts für Astronomie in Bonn [Röser, 1991]. Schlüsselkomponenten sind ein quasioptischer Schottky-Dioden-Mischer sowie ein als Lokaloszillator eingesetzter Moleküllaser. Teil dieser Arbeit war die Konstruktion eines bei 2.5 THz durchlässigen Transmissionsfensters für das Forschungsflugzeug, die Anpassung und Optimierung des SUMAS-Backends mit Experimentsteuerung, Kalibrationseinheit, Spektrometern und Datenaufnahme, sowie die gemeinsame Durchführung der Meßflüge. Ein Blockdiagramm des Gesamtexperiments ist in Abbildung 7.2 (links) zu finden. Zuerst soll jetzt eine zusammenfassende Beschreibung des THOMAS-Frontends, wie sie auch in [Titz *et al.*, 1995 (a)] zu finden ist, erfolgen.

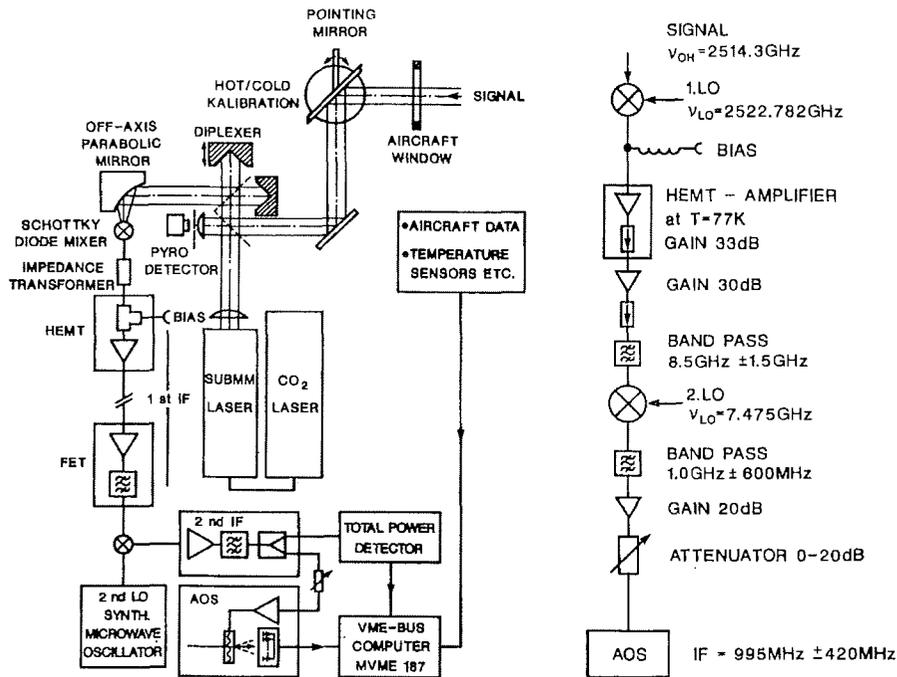


Abbildung 7.2: Links: Aufbau des SUMAS/THOMAS-Systems. Rechts: Blockschaltbild der Zwischenfrequenzkette des Radiometers. Beide Abbildungen sind [Titz et al., 1995 (a)] entnommen.

7.2.1 Der THOMAS-Empfänger

Mischer

Im Terahertzbereich stellen Schottky-Dioden-Mischer die empfindlichsten Heterodyn-detektoren dar [Vowinkel]. Beim THOMAS-Empfänger wird eine Gallium-Arsenid Schottky-Diode verwendet, die in einem quasi-optischen Mischerblock bei Umgebungstemperatur betrieben wird. Das Signal wird mittels einer Langdrahtantenne und einem 90°-Winkelreflektor („Corner Cube Mischer“) eingekoppelt (siehe auch 2.6). Schottky-Dioden werden speziell für den Terahertzbereich von der Universität von Virginia hergestellt. Bei den atmosphärischen Messungen mit dem SUMAS/THOMAS-Radiometer wurden Dioden des Typs 1I12 und 1T15 eingesetzt, deren Charakteristiken bei 2.5 THz in [Crowe, 1992] ausführlich beschrieben sind.

Lokaloszillator

Festkörperoszillatoren mit ausreichender Leistung stehen derzeit bei den Frequenzen des Terahertzbereichs nicht zur Verfügung [Chin, 1992]. Lokaloszillator bei 2522.78 GHz ist daher ein Methanol-Gaslaser. Dieser bei einem Druck von 0.35 hPa betriebene Ferninfrarotlaser wird von einem CO₂-Laser mit einer Leistung von etwa 25 W bei einer Wellenlänge von 9 μm optisch gepumpt. Das Signal des Pumpasers wird mit Hilfe einer ZnSe-Linse und zwei flachen Spiegeln in den Ferninfrarotlaser eingekoppelt. Dieser ist als Ringlaser aufgebaut, welcher aus zwei Quarzröhren der Länge 96 cm und zwei Winkelreflektoren besteht. Der innere Durchmesser der Quarzröhren beträgt 19 mm. Das Pumpsignal tritt durch ein Loch mit einem Durchmesser von 1.5 mm in einem der Winkelreflektoren in den Ringlaser ein. Zum Auskoppeln der Ferninfrarotleistung von etwa 10 mW wird eine mit einem 4 mm dicken Loch versehene, goldbeschichtete Quartzplatte verwendet. Anschließend folgt eine Polyethylenlinse, die den divergierenden Strahl in einen über die Dimension des Empfängers nahezu parallelen Strahl umformt. Die Stabilität des Lokaloszillators hinsichtlich seiner Ausgangsleistung wurde durch den zum Zeitpunkt der Messung unregelmäßig betriebenen CO₂-Laser begrenzt und betrug etwa 10% über einen Zeitraum von 10 min, bevor eine manuelle Nachregelung auf maximale Leistung erfolgen mußte. Für die Nachregelung wird ein Teil des LO-Signals ausgekoppelt und mit Hilfe eines Choppers moduliert, um dann bei Verwendung eines Pyrodetektors und eines Lock-In Verstärkers detektiert werden zu können.

Kalibrationseinheit

Bei den Messungen wurde die schon in Kapitel 4 beschriebene Kalibrationseinheit des SUMAS/ASUR-Empfängers verwendet. Hierzu gehören der Schrittmotor für den Drehspiegel, die Motorsteuerung sowie die zwei bei Raumtemperatur und der Temperatur flüssigen Stickstoffs betriebenen Eichlasten. Als Absorbermaterial wurde Eccosorb AN-72 [Emerson & Cuming] verwendet.

Quasioptik

Die durch das Flugzeugfenster eintretende Atmosphärenstrahlung und die Signale der Kalibrationslasten werden abwechselnd mit Hilfe des rechnergesteuerten Drehspiegels der Kalibrationseinheit in den Empfängereingang eingekoppelt. Der in den Empfängereingang eintretende Strahl und das Lokaloszillatorsignal werden dann mit einem als Diplexer eingesetzten Martin-Puplett-Interferometer räumlich überlagert. Die Signale aus beiden Seitenbändern werden dabei in die Polarisationsrichtung des Lokaloszillators gedreht. Der resultierende Strahl wird schließlich durch einen Parabolspiegel auf den quasi-optischen Mischer entsprechend dessen Antennencharakteristik fokussiert.

Zwischenfrequenzkette

Das vom Mischer generierte Zwischenfrequenzsignal wird durch einen auf die Temperatur flüssigen Stickstoffs gekühlten HEMT-Verstärker verstärkt. Nach einer weiteren Verstärkungsstufe wird der Bandpaß auf eine Bandbreite von 8.5 ± 1.5 GHz begrenzt. In einer zweiten Mischerstufe erfolgt eine Umsetzung der Zwischenfrequenz auf die Eingangsfrequenz des verwendeten Spektrometers von 995 MHz. Desweiteren wird eine Anpassung der Bandbreite und der Eingangsleistung vorgenommen. Ein Blockschaltbild der Zwischenfrequenzkette des SUMAS/THOMAS-Empfängers ist in Abbildung 7.2 zu finden.

7.2.2 Das SUMAS-Backend 1994

Das zusammen mit dem THOMAS-Empfänger im Jahre 1994 eingesetzte SUMAS-Backend unterschied sich lediglich durch die Verwendung eines anderen Spektrometers von der im Kapitel 4 über die SUMAS/ASUR-Messungen ausführlich beschriebenen Konfiguration. Der auf einem VME-Bus-System basierende Unix-Experimentcomputer war hingegen schon 1994 im Einsatz. Bei den Messungen wurde aus Platzgründen – das SUMAS-Backend mußte sich auf ein Flugzeugrack beschränken – nur ein Akusto-Optisches-Spektrometer verwendet.

Akusto-Optisches Spektrometer

Das für die SUMAS/THOMAS-Messungen eingesetzte Akusto-Optische Spektrometer wird bei einer Mittenfrequenz von 995 MHz betrieben. Ein piezoelektrischer Wandler dient zur Umsetzung der Zwischenfrequenzleistung in Schallwellen innerhalb der Bragg-Zelle. Der kollimierte Strahl eines Helium-Neon Lasers wird durch die Schallwellen innerhalb des Bragg-Kristalls gebeugt und auf ein CCD-Array mit 2000 Pixeln abgebildet, welches periodisch vom Experimentcomputer ausgelesen wird. Das hier verwendete AOS weist eine Bandbreite von 840 MHz und eine effektive Auflösung von etwa 1.5 MHz auf. Aufgrund der begrenzten Genauigkeit der optischen Justierung ist die effektive Bandbreite des nicht-temperaturstabilisierten Spektrometers allerdings auf etwa 600 MHz beschränkt.

7.2.3 Das 2.5 THz-Flugzeugfenster

Für die Messungen bei 2.5 THz mußte ein neues Flugzeugfenster entwickelt werden, da die Absorption von Polyethylen mit der Frequenz stark zunimmt. Aufgrund des kleineren Strahldurchmessers beim THOMAS-Empfänger im Vergleich zum ASUR-Instrument konnte der Bau eines kleineren, dünneren Fensters in Betracht gezogen werden. Wegen

ihrer mechanischen Stabilität und relativ guten Transmissionseigenschaften bei 2.5 THz wurden hierfür die Materialien TPX³ sowie HDPE⁴ in die engere Auswahl genommen. Kristallines Quarz, welches die besten Transmissionseigenschaften im Terahertzbereich aufweist, kam wegen seiner mechanischen Brüchigkeit für den Einsatz auf einem hochfliegenden Forschungsflugzeug wie der FALCON nicht in Frage. Messungen mit einem Fourier-Transform-Spektrometer am Institut für Optoelektronik ergaben eine etwas bessere Transmission für HDPE als für TPX [M. Birk, persönliche Mitteilung, 1994]. Dieses Ergebnis steht im Gegensatz zu Literaturangaben [Birch, 1991]. Das im Rahmen dieser Arbeit schließlich konstruierte nur 6 mm dicke HDPE-Flugzeugfenster der Abmessung 100×50 mm stellt einen Kompromiß zwischen geforderter mechanischer Stabilität und guter Transmissionseigenschaften dar. Die rechteckige Form wurde gewählt, um einen Winkelbereich von $\pm 3^\circ$ für eine Korrektur des Flugzeugrollwinkels durch den rechnergesteuerten Drehspiegel zu ermöglichen. Messungen am fertiggestellten Fenster ergaben eine effektive Transmission von 61%, welche durch eine Leistungsreflektion von 4.3% pro Oberfläche des Fensters sowie einer Absorption von 33.5% in Polyethylen der Dicke 6 mm gegeben ist [Titz *et al.*, 1995 (a)]. Fabry-Perot Effekte innerhalb des Fensters wurden durch die Wahl einer Keilform mit einer Dickendifferenz von 0.15 mm auf 50 mm Breite unterdrückt. Zeichnungen des 2.5 THz Transmissionsfensters für das Forschungsflugzeug FALCON sind im Anhang in den Abbildungen A.2 und A.3 zu finden.

7.3 Atmosphärische Messungen

Im Jahre 1994 fanden im Juni und September zwei Meßkampagnen mit dem flugzeuggetragenen SUMAS/THOMAS-Heterodynsystem statt.

Die erste erfolgreiche Messung wurde am 10. Juni 1994 zwischen 11:30 und 14:00 Uhr Ortszeit über Deutschland bei einer Flughöhe von 11.3 km deutlich oberhalb der Tropopause durchgeführt. Der Beobachtungszenitwinkel betrug dabei 70° . Bei dieser Messung konnte zum ersten Mal das OH-Radikal in der Atmosphäre mit einem Heterodynsystem detektiert werden. Das gemessene Spektrum ist in Abbildung 7.3 (oben) dargestellt. Jeweils 8 AOS-Kanäle wurden gemittelt, sodaß die dargestellte Auflösung etwa 3.4 MHz beträgt. Zum Vergleich ist zusätzlich das Ergebnis einer Modellrechnung eingezeichnet, welches lediglich die erwartete Position der OH-Linie verdeutlichen soll. Die beiden Hauptlinien des OH-Triplets sind im stark verrauschten gemessenen Spektrum gut zu erkennen. Das Spektrum wurde hinsichtlich der Transmission, Emission und Reflektion des Flugzeugfensters gemäß Gleichung (5.1) korrigiert. Dabei wurden die Reflektionen an beiden Seiten des Fensters berücksichtigt. Die Rauschtemperatur bei dieser Messung war mit 68000 K (DSB) um etwa einen Faktor 2 höher als das zuvor im Labor mit der glei-

³ Polymethylpentene

⁴ High Density Polyethylene

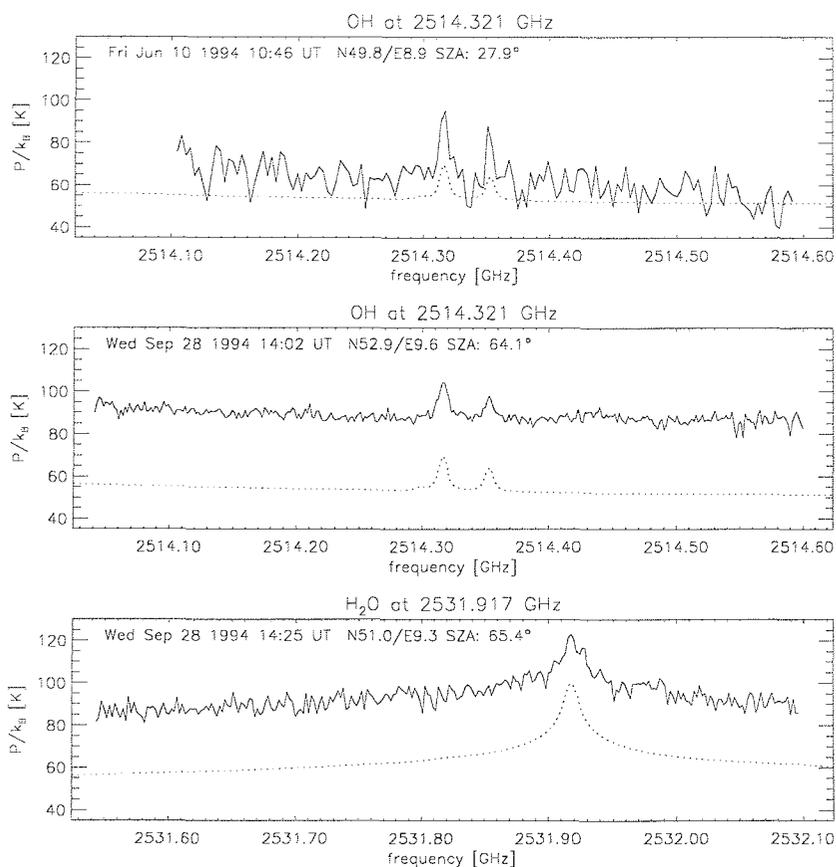


Abbildung 7.3: Mit dem SUMAS/THOMAS-System im Jahre 1994 gemessene Spektren. Oben: OH bei 2514.321 GHz vom 10.6.1994 ($T_{sys} \approx 68000$ K (DSB), $\tau=274$ s, Beobachtungswinkel zum Zenit: 70° , Auflösung: $\Delta\nu=3.4$ MHz). Mitte: OH bei 2514.321 GHz gemessen am 28. September 1994 ($T_{sys} \approx 18000$ K (DSB), $\tau=314$ s, 68° , $\Delta\nu=1.7$ MHz). Unten: H_2O -Messung im oberen Seitenband bei 2531.917 GHz, ebenfalls vom September 1994 ($T_{sys} \approx 25000$ K (DSB), $\tau=190$ s, 68° , $\Delta\nu=2.1$ MHz).

chen Diode vom Typ 1112 erzielte Ergebnis. Zudem wurde trotz der Dauer des Meßfluges von etwa 2.5 h nur eine relativ kurze effektive Integrationszeit von 274 s für die Detektion der thermischen Emissionen des Hydroxylradikals bei 2514.32 GHz erreicht. Neben den Kalibrations- und Totzeiten – diese machen etwa 2/3 der Gesamtmeßzeit aus – ist dies vor allem auf die für die Stabilisierung des Lasers während des Fluges aufgewendete Zeit zurückzuführen. Desweiteren können nur die bei relativ ruhiger Fluglage (Rollwinkel $\leq \pm 3^\circ$) und konstanter Flughöhe durchgeführten Einzelmessungen aufintegriert werden.

Der zweite Meßflug führte am 28. September 1994 zwischen 14:00 und 16:00 Uhr Ortszeit wieder über Deutschland. Hierbei wurde eine maximale Flughöhe von 11,9 km erreicht. Aufgrund der an diesem Tage relativ hohen Tropopause konnte die Messung lediglich im Höhenbereich der Tropopause durchgeführt werden, wie die Messungen der Außentemperatur ergaben. Um der Absorption der OH-Linie durch den Wasserdampf im Bereich der Tropopause entgegenzuwirken, wurde der Beobachtungszenitwinkel des Instruments mit 68° etwas kleiner gewählt. Das gemessene Spektrum ist in Abbildung 7.3 (Mitte) mit einer Auflösung von ca. 1,7 MHz dargestellt. Bei dieser Messung konnte mit einer Schottky-Diode des Typs 1T15 die zuvor im Labor festgestellte Rauschtemperatur von 18000 K (DSB) auch während des Fluges erreicht und somit das Rauschen im Spektrum im Vergleich zur Juni-Messung deutlich um einen Faktor 3,5 verringert werden. Die effektive Integrationszeit für OH betrug dabei 314 s. Am Ende des Fluges konnte durch eine Verschiebung des Spektrums in der Frequenz durch Verstimmen des als zweiten Lokaloszillator verwendeten Synthesizers auch die H_2O -Linie bei 2531,917 GHz im oberen Seitenband gemessen werden. Die Integrationszeit hierfür betrug 190 s und die Systemempfindlichkeit war mit einer Empfängerrauschtemperatur von 25000 K etwas geringer. Das gemessene Wasserdampfspektrum ist in Abbildung 7.3 (unten) dargestellt. Die Auflösung beträgt hier 2,1 MHz. Zusätzlich ist wieder das Ergebnis einer Modellrechnung zur Verdeutlichung der Linienposition eingezeichnet. Die im JPL-Katalog angegebenen Linienfrequenzen können im Rahmen der Meßgenauigkeit sowohl für OH wie auch für H_2O bestätigt werden. Es sei jedoch darauf hingewiesen, daß in der Hitran 96-Datenbank ein um etwa 85 MHz zu kleiner Wert für die Mittenfrequenz von H_2O bei 2531,917 GHz angegeben ist.

Die Messungen mit dem SUMAS/THOMAS-System vom September 1994 brachten also eine deutliche Verbesserung der Systemempfindlichkeit gegenüber der im Juni 1994 durchgeführten Messung. Der Untergrund war allerdings durch die größeren Wasserdampfemissionen aufgrund der hohen Tropopause wesentlich höher als bei der Juni-Messung. Dieser Effekt führt zu einer größeren Absorption und damit zu einem kleineren Linienkontrast. Aufgrund von Modellrechnungen läßt sich eine Differenz im Linienkontrast in der Größenordnung von ca. 20-30% im Vergleich der bei den Messungen vorherrschenden atmosphärischen Bedingungen abschätzen. Zudem kann, verursacht durch die verschiedenen Beobachtungszenitwinkel, eine Abweichung in der Größenordnung von ca. 10% auftreten. OH besitzt einen starken Tagesgang mit Maximalwerten bei höchstem Sonnenstand [Salawitch *et al.*, 1994] [Pickett & Peterson, 1996]. Der bei der Septemberrmessung größere Sonnenzenitwinkel läßt ebenfalls eine kleinere Linie erwarten. Legt man den von [Salawitch *et al.*, 1994] in 19 km Höhe gemessenen Tagesgang zugrunde, so beträgt die Abweichung des OH-Mischungsverhältnisses in dieser Höhe ca. 40-50% beim Vergleich der Sonnenzenitwinkel der Messungen im Juni und September. [Burnett & Burnett, 1996] berichten desweiteren von einer saisonalen Variation der OH-Säulendichten von etwa $\pm 10\%$ um den Jahresmittelwert und einem Minimum im Zeitraum August bis Oktober in der Nordhemisphäre. Dieser Effekt ist allerdings klein

gegenüber den starken Variationen aufgrund des Tagesgangs und des Wasserdampfkontinuums.

Die Beobachtung einer kleineren Linie im September ist somit konsistent mit früheren Messungen anderer Instrumente. Die im Juni 1994 durchgeführte SUMAS/THOMAS-Messung ist jedoch zu verrauscht, um hieraus eine quantitative Aussage im Vergleich der beiden Messungen ableiten zu können.

7.4 Datenanalyse

Die am 28. September 1994 gemessenen OH und H₂O-Spektren sollen nun mit dem für die SUMAS/ASUR-Messungen eingesetzten Verfahren invertiert werden. Mit Hilfe der als Ergebnis der Inversionen erhaltenen Auflösungsmatrizen kann dann eine Aussage über die Qualität der Messungen in Abhängigkeit von der Höhe gewonnen werden.

Zunächst soll eine Inversion der von anderen Linien nahezu ungestörten H₂O-Linie bei 2531.917 GHz durchgeführt werden. Die Vorgehensweise ist wieder ganz analog wie bei den in Kapitel 5 beschriebenen Inversionen der SUMAS/ASUR-Messungen.

7.4.1 Allgemeine Eingabeparameter

Die Inversion der H₂O-Linie wird an den Höhenstützstellen bei Flughöhe, 16 km, 20 km, 24 km, 30 km, 40 km, 50 km und 70 km durchgeführt. Für OH kommen aufgrund des großen mesosphärischen Mischungsverhältnisses noch zwei weitere Stützstellen bei 60 km und 80 km hinzu. Die Stützstellen bei 16 und 24 km entfallen stattdessen. Für Druck und Temperatur werden NMC-Daten⁵ verwendet. Bei den Inversionen werden wieder die Spektrummittenfrequenz und der Spektrumoffset als zu bestimmende Parameter behandelt. Als Frequenzunsicherheit wird a priori 1 MHz angenommen und der Offsetfehler beträgt 5 K. Die Varianzen der Spektrometerkanäle werden für die Spektrumkovarianzmatrizen gemäß der Radiometergleichung entsprechend dem theoretischen statistischen Rauschen berechnet. Im Gegensatz zu den SUMAS/ASUR-Messungen ist beim SUMAS/THOMAS-Radiometer das starke Rauschen und nicht die Systemstabilität der kritische Faktor. Durch eine etwas stärkere Wichtung des „A priori“-Profils soll allerdings eine stabile Inversion gewährleistet werden. Dieser Effekt wird durch die Multiplikation der diagonalen Spektrumkovarianzmatrizen mit einem Faktor 2 erreicht. Die für die Strahlungstransferrechnungen verwendeten spektroskopischen Parameter für die Linienverbreiterung und deren Temperaturabhängigkeit sind in Tabelle A.4 im Anhang angegeben. Für alle anderen spektroskopischen Größen wurde wieder der JPL-Katalog [Pickett *et al.*, 1991] herangezogen. Zudem wurde die Parametrisierung des

⁵National Meteorological Center, USA

Wasserdampfkontinuums aus Gleichung (3.14) nach [Clough *et al.*, 1989] verwendet. Die nichtresonante Stickstoffabsorption wird gemäß Gleichung (3.15) nach [Liebe, 1993] berechnet. Zusätzlich werden noch alle Sauerstoff- und Ozonlinien im Frequenzbereich 2400-2600 GHz mitberechnet, um deren Einfluß auf die „Baseline“ zu berücksichtigen. Im folgenden sollen nun die Besonderheiten der Inversionen für die beiden Moleküle sowie die aus den Inversionen resultierenden Ergebnisse dargestellt werden.

7.4.2 H₂O – 2531.917 GHz

Das für die Inversion von H₂O bei 2531.917 GHz verwendete „A priori“-Profil und die für die Kovarianzmatrix angenommenen „A priori“-Unsicherheiten sind in Abbildung 7.4 (unten links) zu finden. Ebenfalls dargestellt ist das Inversionsergebnis (oben links),

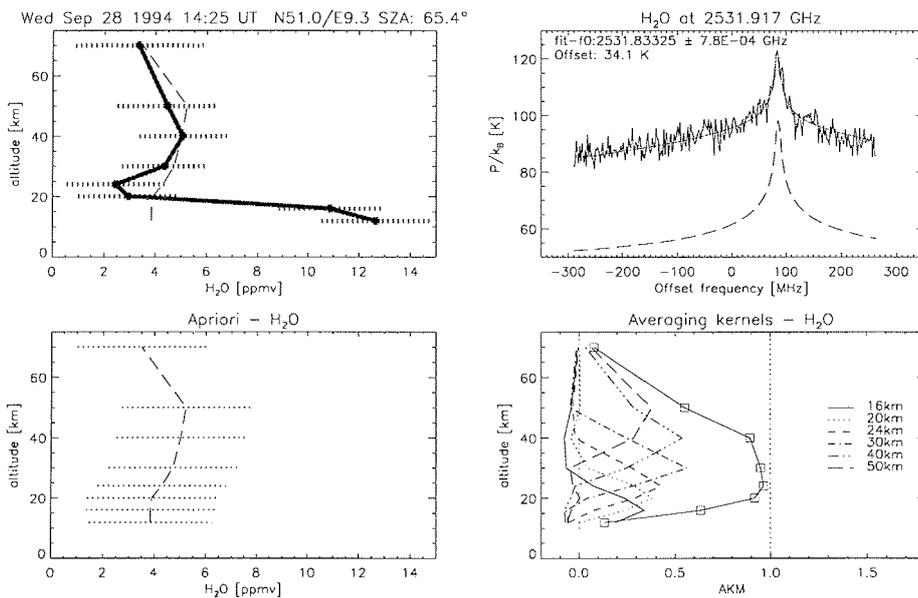


Abbildung 7.4: Inversion der 2531.917 GHz H₂O-Messung vom 28.9.1994. Oben links: Berechnetes Profil mit Fehlerbalken. Das „A priori“-Profil ist gestrichelt dargestellt. Oben rechts: Gemessenes Spektrum überlagert mit der Reproduktion. Zum Vergleich ist gestrichelt das aus dem „A priori“-Profil berechnete Spektrum dargestellt. Aus Darstellungsgründen wurde zum „A priori“-Spektrum ein Offset von 20 K addiert. Desweiteren sind die Ergebnisse für die zusätzlichen freien Parameter Spektrum-Offset und Mittenfrequenz angegeben. Unten links: „A priori“-Profil mit angenommenen 1 σ -Unsicherheiten. Unten rechts: Auflösungskernfunktionen für die H₂O-Messung sowie Summe der Auflösungskernfunktionen (Quadrate).

das gemessene Spektrum (oben rechts) und das aus dem Inversionsergebnis berechnete Modellspektrum, sowie die berechnete Höhenauflösungsmatrix (unten rechts). Zum Vergleich sind auch das „A priori“-Profil und das daraus berechnete Spektrum gestrichelt eingezeichnet. Aus der Einhüllenden der Höhenauflösungsmatrix läßt sich zunächst ablesen, daß der Einfluß der Messung im Höhenbereich 20-40 km überwiegt. Während der Rückgang bei 16 km auf die geringe Bandbreite von nur etwa 600 MHz zurückzuführen ist, wird der Einfluß der Messung bei Höhen oberhalb 40 km durch das starke Rauschen begrenzt. Durch die Inversion werden Wasserdampfmischungsverhältnisse von 4-5 ppmv in der mittleren und oberen Stratosphäre ermittelt. Das minimale Mischungsverhältnis wird mit etwa 2.5 ± 2 ppmv in einer Höhe von 24 km gemessen. Darunter kommt es, wie durch die hohe Baseline zu erwarten war, zu einer starken Zunahme des Wasserdampfgehaltes in der unteren Stratosphäre auf Werte zwischen 11-12 ppmv. Der mit etwa 34 K relativ große Spektrumoffset deutet allerdings darauf hin, daß der Wasserdampfgehalt im Bereich der Flughöhe noch wesentlich größer war. Aufgrund der begrenzten Bandbreite und dem daraus resultierenden geringen Einfluß der Messung im Höhenbereich unterhalb 16 km konnte ein für die Modellierung des Kontinuums ausreichender Wasserdampfgehalt allerdings nicht ermittelt werden. Stattdessen wird das Inversionsergebnis in diesem Bereich stark vom „A priori“-Profil beeinflusst.

7.4.3 OH – 2514.321 GHz

Die „Baseline“ der im Doppelseitenbandmodus gemessenen OH-Linie bei 2514.321 GHz wird durch den Linienflügel der Wasserdampflinie aus dem oberen Seitenband bestimmt. Aus diesem Grund wird für die Inversion der OH-Messung ein 2-Schicht Modell angenommen, bei dem der gesamte Wasserdampf in einer Schicht zwischen der Flughöhe und 14 km zu finden ist. Das in dieser Schicht konstante Wasserdampfmischungsverhältnis wird anstelle des Spektrum-Offsets als freier, durch das Inversionsverfahren zu bestimmender Parameter behandelt. Hierdurch ist eine elegante Berechnung des Spektrumuntergrundes für die im Doppelseitenbandmodus gemessene OH-Linie gewährleistet. Die Inversion von stratosphärischem OH ist aufgrund des in der unteren Stratosphäre mit weniger als 1 pptv sehr kleinen aber mit der Höhe über mehrere Größenordnungen stark anwachsenden Mischungsverhältnisses recht schwierig. Deshalb soll der natürliche Logarithmus des Mischungsverhältnisses an einer festen Höhenstützstelle anstelle des absoluten Wertes als freier Inversionsparameter behandelt werden. Da die Logarithmusfunktion nur für positive Argumente definiert ist, können auf diese Weise nur positive Mischungsverhältnisse durch das Inversionsverfahren ermittelt werden. Das Ergebnis der Inversion für die am 28.9.1994 durchgeführte Messung des OH-Radikals bei 2514.321 GHz ist in Abbildung 7.5 dargestellt. Das verwendete „A priori“-Profil ist wieder unten links abgebildet. Als „A priori“-Unsicherheit wurde ein relativer Fehler von 50% angenommen. Die unten rechts dargestellten Auflösungsfunktionen geben Aufschluß über die Quali-

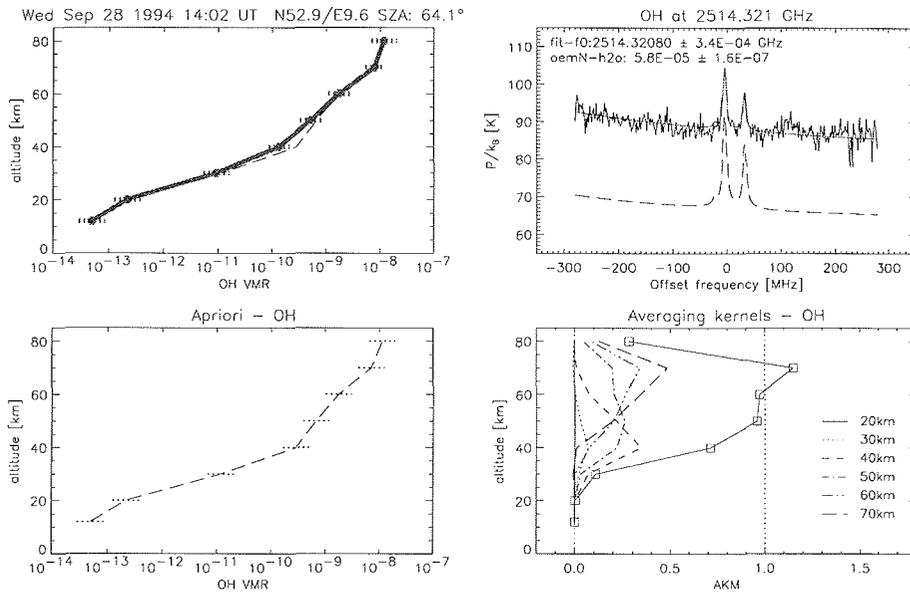


Abbildung 7.5: Inversion des am 28.9.1994 bei 2514.321 GHz gemessenen OH-Spektrums. Oben links: Berechnetes Profil mit Fehlerbalken. Das „A priori“-Profil ist gestrichelt dargestellt. Oben rechts: Gemessenes Spektrum überlagert mit der Reproduktion. Zum Vergleich ist gestrichelt das aus dem „A priori“-Profil berechnete Spektrum dargestellt. Aus Darstellungsgründen wurde zum „A priori“-Spektrum ein Offset von 20 K addiert. Desweiteren sind die Ergebnisse für die zusätzlichen freien Parameter Mittenfrequenz und Wasserdampf (unterhalb 14 km) angegeben. Unten links: „A priori“-Profil mit angenommenen 1σ -Unsicherheiten. Unten rechts: Auflösungsfunktionen für die OH-Messung sowie Summe der Auflösungsfunktionen (Quadrate).

tät der Messung in Abhängigkeit von der Höhe. So hat die Messung erst ab einer Höhe von etwa 35 km einen signifikanten Einfluß auf das Inversionsergebnis. Oberhalb 70 km nimmt der Einfluß der Messung wieder ab. Im Höhenbereich oberhalb 60 km ist bei dieser Frequenz zudem die Dopplerverbreiterung größer als die Druckverbreiterung (siehe Abbildung 3.1), so daß die Auflösungsfunktionen der Stützstellen bei 60 und 70 km stark überlappen und keine Höheninformation mehr in der Messung vorhanden ist. Die Emissionen aus der unteren Stratosphäre sind im Vergleich zum Empfängerrauschen zu klein, um einen meßbaren Beitrag zum Spektrum zu liefern. Das ermittelte Profil (oben links) weicht daher erst ab etwa 35 km vom gestrichelt eingezeichneten „A priori“-Profil ab. Dabei werden etwas kleinere Mischungsverhältnisse berechnet. Das aus dem Inversionsergebnis berechnete Spektrum ist schließlich oben rechts zusammen mit dem gemessenen Spektrum dargestellt. Zum Vergleich ist wieder das aus dem „A priori“-Profil berechnete Spektrum gestrichelt eingezeichnet. Zudem sind das Ergebnis für die Mittenfrequenz des

Spektrometers sowie der berechnete Wasserdampfgehalt für die Schicht unterhalb 14 km angegeben. Letztlich kann aus der Messung alleine jedoch keine Bewertung des Ergebnisses erfolgen. Direkte Vergleichsmessungen liegen nicht vor. Das Mischungsverhältnis bei 40 km bewegt sich mit etwa 135 pptv in der auch von [Pickett & Peterson, 1996] (für 3 hPa) und [Park & Carli, 1991] angegebenen Größenordnung.

7.5 Zusammenfassung: Das SUMAS/THOMAS-Radiometer

Im Rahmen zweier Kampagnen konnte die Tauglichkeit der Heterodyntechnologie für die Messung atmosphärischer Spurengase im Terahertzbereich erfolgreich demonstriert werden. Im Juni 1994 wurde das OH-Radikal in der Atmosphäre zum ersten Mal mit einem Heterodynsystem, dem in einer Zusammenarbeit zwischen der Uni-Bremen und dem Institut für Optoelektronik der DLR entwickelten flugzeuggetragenen SUMAS/THOMAS-Radiometer, detektiert. Im September 1994 konnte zudem eine deutliche Systemverbesserung erzielt werden, die eine Inversion der gemessenen Spektren von OH bei 2514.321 GHz und H₂O bei 2531.917 GHz erlaubte. Hierbei konnte ein Profil des Hydroxylradikals im Höhenbereich 35-70 km berechnet werden. Für Wasserdampf wurden Volumenmischungsverhältnisse bei Höhen zwischen 20 und 50 km ermittelt. Aufgrund der meteorologischen Situation einer hohen Tropopause, die das Vordringen des Forschungsflugzeuges in die Stratosphäre nicht zuließ, ist allerdings ein systematischer Fehler aufgrund der starken, aus der Messung nicht genau bestimmbareren Wasserdampfabsorption, nicht auszuschließen.

Kapitel 8

Zusammenfassung und Ausblick

Zum Schluß sollen die im Rahmen dieser Arbeit erzielten Ergebnisse noch einmal zusammengefaßt dargestellt und ein Ausblick auf zukünftige Entwicklungen und Möglichkeiten hinsichtlich des Einsatzes der Instrumente sowie der Datenanalyse gegeben werden.

8.1 Zusammenfassung der Arbeit

Der Eintrag von Chlor- und Bromverbindungen anthropogenen Ursprungs in die Atmosphäre führt zu einer vor allem in mittleren und hohen Breiten beobachteten Schädigung der vor der ultravioletten Sonnenstrahlung schützenden stratosphärischen Ozonschicht. Aufgrund der langen Lebensdauern der für die Ozonzerstörung verantwortlichen Spurengase in der Stratosphäre kann mit einer Erholung der Ozonschicht selbst bei Einhaltung der internationalen Protokolle nicht vor Mitte des nächsten Jahrhunderts gerechnet werden [WMO, 1995]. Messungen mit dem Ziel der Erforschung der dynamischen und chemischen Prozesse der stratosphärischen Ozonzerstörung sowie der Überwachung des Zustandes der Ozonschicht sind daher noch auf lange Sicht notwendig.

Zahlreiche für die Ozonchemie in der Stratosphäre relevante Spurengase besitzen gerade bei Submillimeterwellenlängen ausgeprägte spektrale Signaturen und lassen sich dort mit Fernerkundungsmethoden besonders gut messen. Die Messungen müssen aufgrund der hohen Wasserdampfabsorption in diesem Wellenlängenbereich von einem Träger oberhalb der Troposphäre durchgeführt werden. **Ziel dieser Arbeit** war aus diesem Grunde

- die Entwicklung, der Einsatz und die Optimierung von flugzeuggetragenen Heterodynempfängern bei 650 GHz und 2500 GHz zur Messung der Spurengase ClO, HCl, O₃, N₂O, H₂O und OH in der Stratosphäre,
- die Anpassung und Weiterentwicklung von Inversionsverfahren zur Ermittlung

von Höhenprofilen aus den gemessenen druckverbreiterten thermischen Emissionslinien der stratosphärischen Spurengase,

- die Interpretation der im Rahmen zahlreicher Meßkampagnen mit insgesamt etwa 50 Meßflügen gewonnenen Daten mit Hinblick auf den gegenwärtigen Zustand der Stratosphäre.

Im ersten Teil der Arbeit wurde zunächst das notwendige **Hintergrundwissen** bereitgestellt. Hierbei wurden die chemische Zusammensetzung und die wichtigsten Transportprozesse in der Atmosphäre erläutert, sowie ein grundlegender Einblick in die Methodik der Submillimeterwellenradiometrie gewährt. Ferner wurden das für die Bestimmung der atmosphärischen Parameter aus den gemessenen Spektren verwendete Inversionsverfahren und das dabei eingesetzte Strahlungstransportmodell für den Submillimeterwellenbereich beschrieben.

Der zweite Teil der Arbeit befaßte sich ausführlich mit den im Spektralbereich 624-654 GHz durchgeführten Messungen stratosphärischer Spurengase mit dem **SUMAS/ASUR-Radiometer**. Der SUMAS/ASUR-Empfänger erzielt seine hohe Empfindlichkeit durch die Verwendung hochentwickelter SIS¹-Dioden als Detektionselemente, welche mittels eines frequenzstabilisierten Festkörper-Lokaloszillators gepumpt werden. Dabei konnten Empfängerrauschtemperaturen von etwa 450 K im Einzelseitenbandmodus erreicht werden.

- Das SUMAS/ASUR-System gestattet Messungen des für den Ozonabbau in der unteren Stratosphäre der winterlichen Polarwirbel hauptverantwortlichen Chlorradikals ClO bei 649.448 GHz, des Chlorreservoorgases HCl bei 625.917 GHz, des durch chemische Prozesse unbeeinflussten Spurengases N₂O bei 627.752 GHz sowie von Ozon bei 625.372 GHz.
- Die Voraussetzungen zur gleichzeitigen Messung von HCl bei 625.917 GHz und Ozon bei 625.372 GHz wurden 1995 durch die Anpassung eines breitbandigen, hochauflösenden Akusto-Optischen-Spektrometers an das Meßsystem geschaffen.
- Durch eine Erweiterung des Spektralbereichs konnte ab 1996 zudem eine zweite, durch Überlappung mit anderen Linien weniger gestörte N₂O-Linie bei 652.833 GHz gemessen werden.

Nachdem die für eine erfolgreiche Durchführung der Meßflüge wichtigen instrumentellen Eigenschaften des SUMAS/ASUR-Experiments hinsichtlich Systemstabilität und Systemempfindlichkeit charakterisiert und dargestellt wurden, stand die Anpassung des auf

¹ Supraleiter-Isolator-Supraleiter

der „Optimal-Estimation“-Methode basierenden Inversionsverfahrens zur Bestimmung von Höhenprofilen aus den druckverbreiterten Emissionslinien im Vordergrund. Insbesondere wurde eine Charakterisierung des Fehlers und der räumlichen Auflösung der atmosphärischen Messungen für jede der gemessenen Moleküllinien vorgenommen. Schließlich erfolgte eine Validierung der Meßergebnisse durch den Vergleich mit den Messungen anderer Instrumente.

Einen weiteren Schwerpunkt des zweiten Teils der Arbeit bildete die **Interpretation ausgewählter Messungen** aus den Jahren 1996 und 1997 mit Hinblick auf den Zustand der polaren Stratosphäre im arktischen Winter:

- Hierbei stand die im Februar und März 1996 durchgeführte Meßkampagne im Mittelpunkt. Die wichtigsten Ergebnisse der Messungen in diesem in der unteren Stratosphäre der Arktis außergewöhnlich kalten Winter seien an dieser Stelle noch einmal kurz zusammengestellt:
 - Es wurde eine sehr starke Chloraktivierung im arktischen Polarwirbel mit ClO-Spitzenwerten von bis zu 2.0 ± 0.25 ppbv in der unteren Stratosphäre festgestellt.
 - Gleichzeitig wurden stark verringerte Mischungsverhältnisse des Reservoirgases HCl unterhalb etwa 24 km beobachtet.
 - Neben einer hohen ClO-Variabilität konnte sowohl innerhalb als auch am Rande des Polarwirbels eine deutliche Antikorrelation von ClO und HCl beobachtet werden.
 - Die niedrigen vom SUMAS/ASUR-Instrument gemessenen HCl-Mischungsverhältnisse unterstützen ferner die von [Rex et al., 1997] hervorgebrachte These der „Chlornitratfalle“, mit der ein durch Ozonsondenmessungen festgestellter Rückgang der Ozonabbaurate ab Mitte Februar 1996 erklärt werden kann. Hierbei wird angenommen, daß eine effektive Chloraktivierung über die schnelle heterogene Reaktion von ClONO_2 mit HCl an PSC's nicht mehr möglich ist, wenn HCl bereits vollständig verbraucht ist.
 - Erstmals wurden räumlich hochaufgelöste Schnitte aller vier Spurengase über den Rand des Polarwirbels bei ungefähr identischen geographischen Positionen gemessen. Hierbei wurde insbesondere der Effekt des Absinkens der Luft im Polarwirbel verdeutlicht. Während sich das untere ClO-Maximum von 24 km am äußeren Wirbelrand bei zunehmendem Mischungsverhältnis auf eine Höhe von 20 km im Wirbelinneren veränderte – dieses Ergebnis wurde durch die N_2O -Beobachtungen vom gleichen Flug bestätigt – wurden die chemischen Ozon- und HCl-Verluste im Wirbelinneren offenbar durch den Transport Ozon- bzw. HCl-reicher Luftmassen von oben überdeckt.

- Eine Korrelationsanalyse mittels des bei 652.833 GHz gemessenen konservativen „Tracers“ N_2O gestattet eine Zuordnung zwischen den Messungen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels und damit eine zusammenfassende Betrachtung der Messungen aller während der Meßkampagne durchgeführten Flüge. Hierdurch konnte ein chemischer Ozonverlust im Polarwirbel von 2.0 ± 0.7 ppmv bei 100 ppbv N_2O (ungefähr 20 km im Vortex) zum Zeitpunkt der 1996er-Kampagne im Vergleich zu den knapp außerhalb des Wirbels gemessenen Mischungsverhältnissen ermittelt werden. Für HCl beliefen sich die Verluste auf ca. 0.9 ± 0.3 ppbv im gleichen Höhenbereich. Die Ergebnisse sind konsistent mit den Beobachtungen anderer Instrumente [Rex *et al.*, 1997] [Müller *et al.*, 1997].
- Im Februar 1997 wurden im Rahmen einer kurzen Kampagne erneut Messungen mit dem SUMAS/ASUR-Instrument in der Arktis durchgeführt. Hierbei wurde eine ähnlich ausgeprägte Chloraktivierung wie im Vorjahr beobachtet.
- Die Messungen des SUMAS/ASUR-Systems wurden darüberhinaus für eine Validierung des dreidimensionalen chemischen Transportmodells (SLIMCAT) der Universität Cambridge verwendet.
- Zuletzt erfolgte eine Interpretation der SUMAS/ASUR-Messungen bezüglich des Tagesganges von ClO. Da der tägliche Auf- und Abbau einer ClO-Schicht in der unteren Stratosphäre im Höhenbereich um 20 km ein Kennzeichen des unter den Bedingungen gestörter Chemie für den Ozonabbau hauptverantwortlichen ClO-Dimer Zyklus ist, stellt die Überprüfung des Tagesganges von ClO bei 20 km einen Test für das Verständnis der Chemie des längerfristigen katalytischen Ozonabbaus in den Polarwirbeln dar. Die zeitlich hochaufgelösten SUMAS/ASUR-Messungen wurden dazu mit den Ergebnissen eines eindimensionalen photochemischen Modells verglichen. Hierbei konnten die im Modell verwendeten Reaktionskonstanten für den ClO-Dimer Zyklus im Rahmen der Fehlergrenzen im wesentlichen bestätigt werden.

Im dritten Teil der Arbeit wurde schließlich auf die **Weiterentwicklung der Radiometertechnologie** in den Terahertzbereich eingegangen:

Im Rahmen zweier Kampagnen mit dem in einer Zusammenarbeit zwischen der Universität Bremen und dem Institut für Optoelektronik der DLR entwickelten SUMAS/THOMAS-Radiometer konnte die Tauglichkeit der Heterodyntechnologie für die Messung atmosphärischer Spurengase im Terahertzbereich erfolgreich demonstriert werden. Schlüsselkomponenten des SUMAS/THOMAS-Systems sind ein quasi-optischer Schottky-Dioden-Mischer, ein optisch gepumpter Moleküllaser als Lokaloszillator, sowie

ein Akusto-Optisches-Spektrometer. Zudem mußte ein für Messungen bei 2.5 THz geeignetes Transmissionsfenster für das Forschungsflugzeug entwickelt werden.

- Im Juni 1994 konnte das OH-Radikal in der Atmosphäre zum ersten Mal mit einem flugzeuggetragenen Heterodynsystem detektiert werden.
- Im September 1994 wurde zudem eine deutliche Systemverbesserung erzielt, die eine Inversion der gemessenen Spektren von OH bei 2514.321 GHz und H₂O bei 2531.917 GHz erlaubte. Hierbei wurde ein Profil des Hydroxylradikals im Höhenbereich 35-70 km berechnet. Für Wasserdampf wurden Volumenmischungsverhältnisse bei Höhen zwischen 20 und 50 km ermittelt.

Mit dem SUMAS/THOMAS-Empfänger wurden minimale Empfängerrauschtemperaturen von etwa 18000 K im Doppelseitenbandmodus erzielt.

8.2 Fazit und Ausblick

Das flugzeuggetragene **SUMAS/ASUR-Experiment** stellt mit seiner hohen Empfindlichkeit und der daraus resultierenden hohen räumlichen Auflösung ein leistungsfähiges System zur Untersuchung kleinräumiger Variationen der Spurengasverteilungen von ClO, HCl, N₂O und O₃ in der Stratosphäre dar. Die Chloraktivierung innerhalb und am Rande des Polarwirbels kann durch die direkten Messungen des Chlorradikals ClO und des Reservoirgases HCl bestimmt werden. Gleichzeitig erlauben die Messungen des chemisch inaktiven Spurengases N₂O eine Unterscheidung zwischen chemisch und dynamisch bedingten Verlusten der gemessenen Spurengasmischungsverhältnisse im Polarwirbel im Vergleich zu außerhalb des Wirbels gemessenen Referenzwerten. Hierdurch ist das SUMAS/ASUR-System insbesondere in der Lage, eine Abschätzung des Ozonabbaus im Polarwirbel vorzunehmen. Die hohe Empfindlichkeit des Radiometers ermöglicht ferner zeitlich hochaufgelöste Messungen des Tagesganges von ClO und damit die Untersuchung des hierfür verantwortlichen ClO-Dimer-Zyklus. Die Messungen können desweiteren zur Validation dreidimensionaler chemischer Transportmodelle eingesetzt werden. Das SUMAS/ASUR-Radiometer stellt damit ein leistungsfähiges, technisch ausgereiftes und operationell nutzbares Meßsystem mit hohem Potential für die Atmosphärenforschung dar.

Aufgrund einer noch offenen Finanzierung für das Jahr 1998 wird das SUMAS/ASUR-Radiometer voraussichtlich erst wieder im Frühjahr 1999 im Rahmen der europäischen THESEO²-Meßkampagne für die Untersuchung chemischer Prozesse in der Stratosphäre hoher und mittlerer Breiten eingesetzt. Hierbei sollen die Meßflüge im Rah-

²Third European Stratospheric Experiment on Ozone

men des HIMSPEC³-Projekts [Oelhaf, 1997] mit den Messungen des ballongetragenen MIPAS-Instruments [Oelhaf et al., 1995] koordiniert werden, sodaß mit Hilfe der MIPAS ClONO₂-Messungen eine Bilanzierung des stratosphärischen Chlorgehalts möglich wird. Durch den gleichzeitigen Einsatz des OLEX-Instruments [Wirth & Renger, 1996] auf der FALCON zur Detektion von PSC's in der unteren Stratosphäre kann zudem eine mögliche kleinräumige Korrelation zwischen den SUMAS/ASUR ClO-Messungen und dem Auftreten der Wolken untersucht werden. Um hierfür den nötigen Platz im Forschungsflugzeug zu schaffen, wird das SUMAS/ASUR-Experiment verkleinert und benötigt in Zukunft nur noch zwei Flugzeugracks. Im Rahmen der THESEO-Kampagne werden wieder eine Anzahl von Meßflügen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels durchgeführt, sodaß die im Rahmen dieser Arbeit erstmals auf die SUMAS/ASUR-Daten angewendete N₂O-Korrelationsanalyse erneut zur Bestimmung des Ozonabbaus im Polarwirbel eingesetzt werden kann. Ob die Korrelationsanalyse bei Verwendung der qualitativ schlechteren bei 627.752 GHz gemessenen N₂O-Daten brauchbare Ergebnisse liefert, muß desweiteren in Hinblick auf die 1995 und 1997 durchgeführten Messungen dieser Linie noch untersucht werden.

Mit dem 1994 erfolgreich durchgeführten ersten Einsatz des **SUMAS/THOMAS-Empfängers bei 2.5 THz** wurde technisches Neuland betreten und die Leistungsfähigkeit der Heterodyntechnologie für atmosphärische Messungen auch in diesem Spektralbereich durch die Detektion einer OH-Linie bei 2514.321 GHz sowie einer Wasserdampflinie bei 2531.917 GHz unter Beweis gestellt.

Nach dem Ausscheiden der Universität Bremen aus dem gemeinsamen SUMAS/THOMAS-Projekt nach den Messungen im September 1994 wurden von Seiten des Instituts für Optoelektronik der DLR noch zwei weitere Meßkampagnen mit einem eigenen Backend durchgeführt. So nahm das THOMAS-System an der SESAME III Kampagne im Februar 1995 teil. Ergebnisse dieser Messungen sind in [Titz et al., 1995 (b)] zu finden. 1997 wurde das System erneut für eine Vergleichskampagne mit dem MAHRSI/CHRISTA-Experiment [Conway et al., 1996] auf dem Space-Shuttle eingesetzt, wobei erstmals ein verbessertes Flugzeugfenster deutlich geringerer Absorption aus Silizium verwendet wurde.

Der Vorschlag für den Einsatz des THOMAS-Meßsystems auf dem russischen Stratosphärenflugzeug GEOPHYSIKA [Hausmann et al., 1997] wurde von der Europäischen Union nicht unterstützt, obwohl die Beobachtung der unteren Stratosphäre im „Limb-Sounding“-Modus die Messung von stratosphärischem OH mit einer Höhenauflösung von etwa 3 km ermöglichen würde. Hierbei sollte auch ein im Rahmen eines früheren EU-Projekts [ASMOHR, 1995] vom Rutherford Appleton Laboratory in Chilton, England, neu entwickelter Hohlleiterschmalbandverstärker für 2.5 THz zusammen mit dem modifizierten THOMAS-Empfänger zum Einsatz kommen.

Aufgrund der Wichtigkeit des OH-Radikals für die Atmosphärenchemie sind dennoch

³High and middle latitude speciation of the nitrogen, chlorine, and hydrogen chemical families by airborne measurements

verschiedene Projekte in diesem Zusammenhang geplant. So untersucht die ESA⁴ die Tauglichkeit von im Ferninfrarotbereich konkurrierender Meßsysteme für den satellitengestützten Einsatz [*Piramhyd*, 1997]. Demgegenüber wurde auf amerikanischer Seite bereits eine Entscheidung zugunsten eines Ferninfrarot-Heterodynsystems im Rahmen des EOS-MLS-Projekts⁵ [*Waters*, 1992] getroffen.

⁴European Space Agency

⁵Earth Observation System - Microwave Limb Sounder

Anhang A

A.1 Das ASUR Lokaloszillator- und PLL-System

Die Funktionsweise des im ASUR-Empfänger verwendeten frequenzstabilisierten Lokaloszillatorsystems ist bereits in Abbildung 4.3 schematisch dargestellt. Ein kleiner Anteil der Gunn-Oszillator Leistung wird vor dem Frequenzvervielfacher ausgekoppelt und mittels eines harmonischen Mischers mit dem Signal eines Referenzoszillators auf eine Zwischenfrequenz von $\nu_{zf,pll} = 60$ MHz umgesetzt. Über die Regelung der Versorgungsspannung des Gunnoszillators sorgt die PLL-Elektronik für die Stabilisierung dieser Zwischenfrequenz und somit des Lokaloszillatorsignales.

Um eine ausreichend stabile Referenzoszillatorfrequenz zu erreichen wird ein verstimmbarer Synthesizer bei ca. 100 MHz eingesetzt, der eine Frequenzgenauigkeit besser als 10 Hz aufweist. Dessen Signal wird zunächst in einen kommerziell erhältlichen, ebenfalls PLL stabilisierten Mikrowellenoszillator eingespeist, der die 90. Harmonische des Eingangssignales am Ausgang liefert. Da beim Mischprozeß am harmonischen Mischer der ASUR-PLL zudem die 12. Harmonische zur Erzeugung der 60 MHz-Zwischenfrequenz verwendet wird, läßt sich die Lokaloszillatorfrequenz $\nu_{1.LO}$ aus der vorgegebenen Synthesizerfrequenz ν_{ref} wie folgt berechnen:

$$(A.1) \quad \nu_{1.LO} = \nu_{Gunn} \times 2 \times 3 \quad \text{mit} \quad \nu_{Gunn} = \nu_{ref} \times 90 \times 12 + \nu_{zf,pll}$$

Die elektronische Regelung der Zwischenfrequenz ist bei der ASUR-PLL derzeit nur für das obere Seitenband $\nu_{Gunn} > (\nu_{ref} \times 90 \times 12)$ vorgesehen. Beim Einstellen einer Lokaloszillatorfrequenz muß zusätzlich zur Verstimmung der Frequenz des Referenzoszillators im Regelfall noch eine Anpassung der Gunn-Ausgangsleistung über eine manuelle Verstellung der Mikrometerschraube am Gunnoszillator erfolgen. Eine Liste der ASUR-Meßfrequenzen inklusive der PLL-Referenzfrequenzen ist in Tabelle A.1 angegeben.

$\nu_{0, sig}$ GHz	ν_{ref} [MHz]	$\nu_{1, LO}$ [GHz]	$\nu_{1, ZF}$ [GHz]	$\nu_{2, LO}$ [GHz]	SSB- μm [μm]	Messung im Jahr	Moleküle (Signalband)
624.76809	98.06915	635.84809	11.08	14.78	10.670	1996/97	H ³⁷ Cl, ¹⁶ O ₃ , ⁸¹ BrO, HO ³⁵ Cl
625.91751	98.24653	636.99751	11.08	14.78	10.660	1994-96	H ³⁵ Cl,
	98.33951	637.6	11.68249	15.38249	10.430	1997	¹⁶ O ₃
627.28809	98.45804	638.36809	11.08	14.78	10.655	1994-96	N ₂ O,
	98.33951	637.6	10.31191	14.01191	10.670	1997	¹⁸ O ¹⁶ O
648.07751	98.24653	635.84809	11.08	14.78	10.545	1994-96	¹⁶ O ₃
	98.33951	637.6	10.47751	14.17751	10.550	1997	
649.44809	98.45804	638.36809	11.08	14.78	10.540	1994-96	ClO, HO ₂ ,
	98.33951	637.6	11.84808	15.54808	10.315	1997	¹⁸ O ¹⁶ O ¹⁶ O
652.83299	98.98040	641.75299	11.08	14.78	10.520	1996	N ₂ O
	98.86929	641.03300	11.79999	15.49999	10.295	1997	

Tabelle A.1: Meßfrequenzen des ASUR-Empfängers inklusive der Lokalszillator-, PLL-Referenzoszillator- und ersten Zwischenfrequenzen. Die Ausgangsmittelfrequenz des Empfängers ist immer 3.7 GHz. Vollständigkeitshalber sind auch die Ergebnisse der Seitenbandfilter-Kalibrationen (für 1996 und 1997) angegeben.

A.2 Spektrallinien im ASUR-Frequenzbereich

Eine Auflistung der wichtigsten Emissionslinien im SUMAS/ASUR-Spektralbereich sowie der für die Modellrechnungen im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Parameter für die Linienverbreiterung und deren Temperaturabhängigkeit ist in Tabelle A.2 zu finden.

Molekül	Linienfrequenz ν_0 [GHz]	$\Delta\nu_c^0$ [MHzhPa ⁻¹]	x	Referenz ($\Delta\nu_c^0$, x)	Messung Jahr
ASUR (lsb):					
¹⁶ O ₃	623.6878	2.5	0.7	*	–
⁸¹ BrO	624.7681	2.5	0.7	*	1996
H ³⁷ Cl	624.9768	2.62	0.68	[Buffa, 1992]	1996
HO ³⁵ Cl	625.0749	2.5	0.7	*	1996
¹⁶ O ₃	625.3715	2.071	0.76	HITRAN-96 †	1995-97
HO ₂	625.3715	3.1	0.75	[de Zafra et al., 1984]	–
H ³⁵ Cl	625.9175	2.620	0.68	[Buffa, 1992]	1991-97
N ₂ O	627.7517	2.148	0.792	[Hawkins et al., 1983]	1994-97
¹⁸ O ¹⁶ O	627.7571	1.319	0.71	HITRAN-96 †	1994-97
ASUR (usb):					
¹⁶ O ₃	647.8402	2.123	0.76	HITRAN-96 †	1991-97
¹⁸ O ₃	649.1371	2.5	0.7	*	1995-97
ClO	649.4480	2.09	0.85	[Cohen & OH, 1994]	1991-97
HO ₂	649.7015	3.1	0.75	[de Zafra et al., 1984]	1995-97
¹⁶ O ₃	650.7330	2.071	0.76	HITRAN-96 †	–
¹⁶ O ₃	651.4760	2.115	0.76	HITRAN-96 †	–
¹⁶ O ₃	651.5570	2.270	0.76	HITRAN-96 †	–
N ₂ O	652.8338	2.116	0.8	HITRAN-96 †	1996-97
¹⁶ O ₃	653.7626	2.109	0.76	HITRAN-96 †	–

Tabelle A.2: Mittlere Linienfrequenzen gemäß [Pickett et al., 1991] der wichtigsten Moleküllinien im ASUR-Frequenzbereich inklusive der für die Modellrechnungen verwendeten Parameter für die Linienverbreiterung und deren Temperaturabhängigkeit. Alle anderen spektroskopischen Größen wie z.B. die Absorptionsquerschnitte wurden generell [Pickett et al., 1991] entnommen. (*: Schätzwerte, †: HITRAN-Datenbank, Ausgabe 1996, für weitere Informationen siehe z.B. [Rothman et al., 1992].)

A.3 Die SUMAS-Filterbank

Eine Frequenzliste der einzelnen Kanäle des für die Messungen mit dem SUMAS/ASUR-Radiometer eingesetzten Filterbank-Spektrometers ist in Tabelle A.3 angegeben. Die Eingangsmittelfrequenz des Spektrometers beträgt 3.7 GHz.

No.	Offset-freq. [MHz]	Bandwidth [MHz]	Filter [MHz]	No.	Offset-freq. [MHz]	Bandwidth [MHz]	Filter [MHz]
1	-560	80	395-475	28	+560	80	395-475
2	-480	80	475-555	27	+480	80	475-555
3	-400	80	555-635	26	+400	80	555-635
4	-320	80	635-715	25	+320	80	635-715
5	-240	80	715-795	24	+240	80	715-795
6	-180	40	795-835	23	+180	40	795-835
7	-140	40	835-875	22	+140	40	835-875
8	-100	40	875-915	21	+100	40	875-915
9	-60	40	915-955	20	+60	40	915-955
10	-36	8	332-340	19	+36	8	260-268
11	-28	8	324-332	18	+28	8	268-276
12	-20	8	316-324	17	+20	8	276-284
13	-12	8	308-316	16	+12	8	284-292
14	-4	8	300-308	15	+4	8	292-300

Tabelle A.3: Frequenzliste der Kanäle der SUMAS-Filterbank.

Eine detaillierte Darstellung des Aufbaus der SUMAS-Filterbank in Form eines Blockschaltbildes ist in Abbildung A.1 dargestellt.

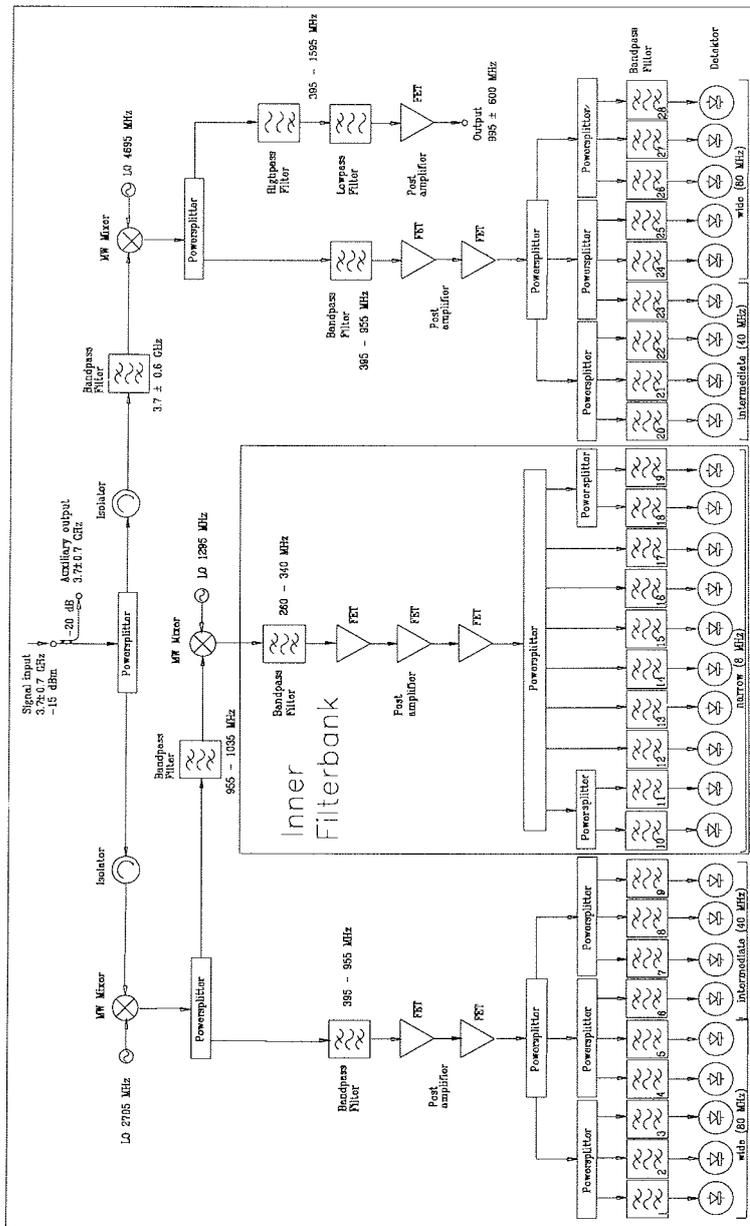


Abbildung A.1: Blockschnittbild der SUMAS-Filterbank.

A.4 Spektrallinien im THOMAS-Meßbereich

Die Frequenzen der vom SUMAS/THOMAS-Experiment gemessenen Spektrallinien sowie die für die Strahlungstransferrechnungen verwendeten spektroskopischen Parameter für die Druckverbreiterung sind in Tabelle A.4 aufgeführt. Alle anderen spektroskopischen Parameter wurden [Pickett *et al.*, 1991] entnommen.

Molekül	Linienfrequenz $\bar{\nu}_0$ [GHz]	$\Delta\nu_c^0$ [MHzhPa ⁻¹]	x	Referenz ($\Delta\nu_c^0, x$)	Messung Jahr
THOMAS (lsb):					
OH	2514.321	2.410	0.71	[Chance <i>et al.</i> , 1991],[Buffa, 1987]	1994
THOMAS (usb):					
H ₂ O	2531.917	2.100	0.64	HITRAN-96 †	1994

Tabelle A.4: Mittlere Linienfrequenzen gemäß [Pickett *et al.*, 1991] der gemessenen Moleküllinien im THOMAS-Frequenzbereich sowie die für die Modellrechnungen verwendeten Parameter für die Linienverbreiterung und deren Temperaturabhängigkeit. (†: HITRAN-Datenbank, Ausgabe 1996, [Rothman *et al.*, 1992].)

A.5 Das 2.5 THz-Flugzeugfenster

Abbildung A.2 zeigt die Konstruktionszeichnung des bei den atmosphärischen Messungen mit dem SUMAS/THOMAS-Radiometer eingesetzten 2.5 THz-Transmissionsfensters für das Forschungsflugzeug FALCON der Deutschen Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt. Die Fensterhalterung besteht aus Aluminium. Als Fenstermaterial wurde HDPE (High Density Polyethylene) verwendet. Die Konstruktionszeichnung des HDPE-Einsatzes ist in Abbildung A.3 dargestellt.

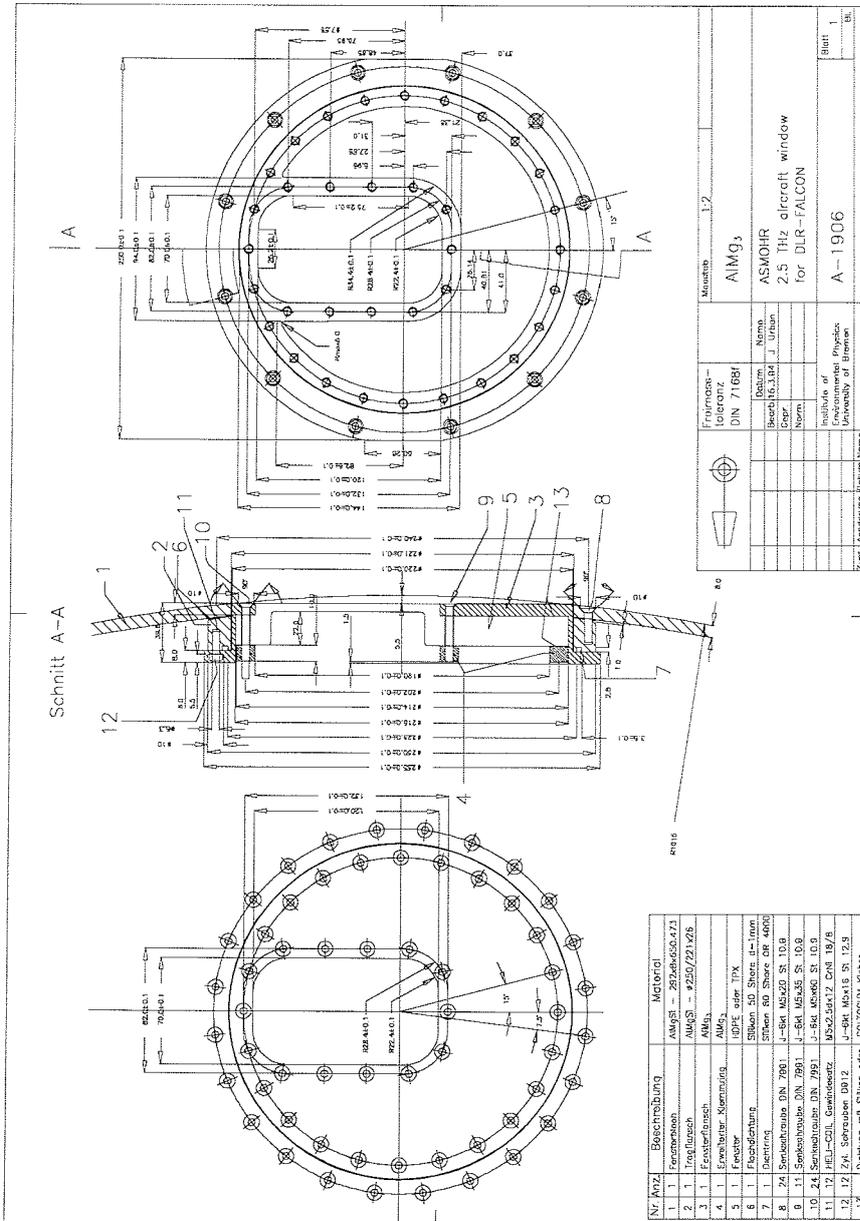


Abbildung A.2: Konstruktionszeichnung des 2.5 THz-Transmissionsfensters mit Aluminiumhalterung und HDPE-Einsatz für das Forschungsflugzeug FALCON der DLR.

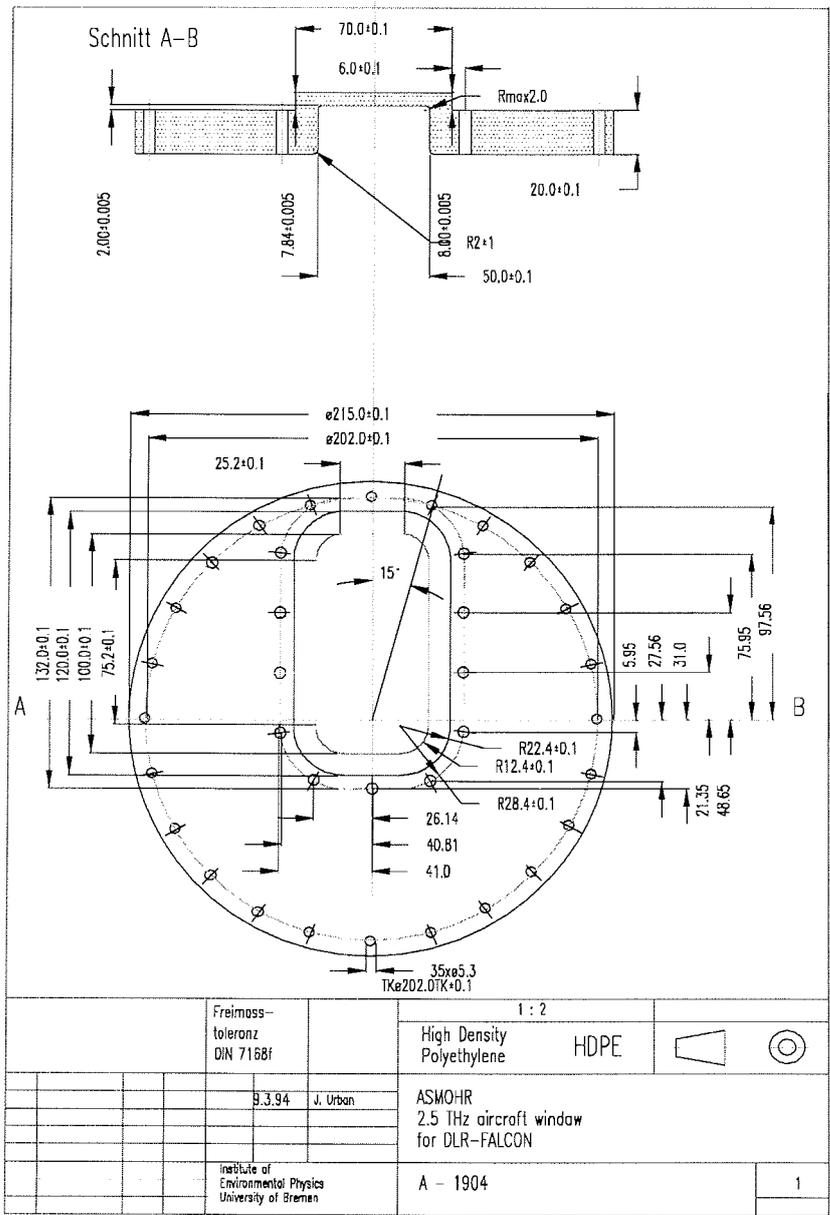


Abbildung A.3: Detaillierte Zeichnung des HDPE-Einsatzes für das 2.5 THz-Fenster des Forschungsflugzeuges FALCON.

Literatur

- [Allan, 1966] **Allan, D.W.**, Statistics of Atomic Frequency Standards, *Proc. of IEEE*, Vol. 54, No.2, 1966
- [ASMOHR, 1995] Development of an airborne heterodyne sub-mm spectrometer to measure OH, *Final report on EU/Contract No. EV5V-CT92-0081*, 1995
- [Bates & Nicolet, 1950] **Bates, D.R. and M. Nicolet**, The photochemistry of atmospheric water vapor, *Journal of Geophysical research*, Vol. 55, 301, 1950
- [Birch, 1991] **Birch, J.R.**, The far infrared optical constants of some common polymers, *NPL report DES 111, ISSN 0143-7305*, 1991
- [Blindauer et al., 1996] **Blindauer, C., V. Rozanov, and J.P. Burrows**, Actinic Flux and Photolysis Frequency Comparison Computations Using the Model PHOTOGT, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 24, 1-21, 1996
- [Bond, 1996] **Bond, S. Th.**, The Potential Effect of Cirrus on Microwave Limb Sounder Retrievals, *Dissertation, University of Edinburgh*, 1996
- [Bowman & Krueger, 1985] **Bowman, K.P. and A.J. Krueger**, A global climatology of total ozone from the Nimbus 7 total ozone mapping spectrometer, *Journal of Geophysical research*, Vol. 90, 7967-7976, 1985
- [Brasseur & Solomon] **Brasseur, G., and S. Solomon**, Aeronomy of the Middle Atmosphere, *D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Boston, Lancaster, Tokyo*, Second edition, 1986
- [Bremer, 1997] **Bremer, H.**, Auswertung ausgewählter Meßflüge der Frühjahrskampagne 1997 mit Hilfe des modifizierten Submillimeterwellenradiometers ASUR, *Diplomarbeit, Universität Bremen*, 1997
- [Buffa, 1987] **Buffa, G.**, Predictions for collisional broadening of far-infrared OH rotational lines of atmospheric interest, *Applied Optics*, Vol. 26, No. 15, 1987
- [Buffa, 1992] **Buffa, G.**, *Personal communication*, 1992
- [Burch, 1968] **Burch, D.E.**, Absorption of infrared radiant energy by CO₂ and H₂O. III. Absorption by H₂O between 0.5 and 36 cm⁻¹, *Journal of the Optical Society of America*, 58, 1383-1394, 1968
- [Burnett & Burnett, 1996] **Burnett, C.R., and E.B. Burnett**, The regime of decreased OH vertical column abundances at Fritz Peak Observatory, CO: 1991-1995, *Geophysical Research Letters*, 23, No. 15, 1925-1927, 1996

- [Burrows *et al.*, 1997] **Burrows, J.P., K. Bramstedt, R. DeBeek, R. Hoogen, M. Buchwitz, V. Rozanov, M. Weber, A. Richter, K.U. Eichmann, M. Eisinger, and A. Ladstätter-Weissenmayer**, The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission, Instrument Concept, and First Scientific Results, *submitted to the Journal of the Atmospheric Sciences*, 1997
- [Bühler *et al.*, 1996] **Bühler, S., V. Eyring, H. Küllmann**, The impact of Continuum Emissions in the mm and Sub-mm Spectral range, *Final report on ESTEC/Contract No. 10998/94/NL/CN*, 1996
- [Carli *et al.*, 1993] **Carli, B.**, SAFIRE-A: Spectroscopy of the atmosphere using far infrared emission - airborne, *Proposal to CEC*, 1993
- [Chance *et al.*, 1991] **Chance, K.V., D.A. Jennings, K.M. Evenson, M.D. Vanek, I.G. Nolt, J.V. Radostitz, K. Park**, Pressure broadening of the 118.455 cm^{-1} Rotational Lines of OH by H₂, He, N₂, and O₂, *Journal of Molecular Spectroscopy*, 146, 375-380, 1991
- [Chance *et al.*, 1996] **Chance, K.V., W.A. Traub, D.G. Johnson, K.W. Jucks, P. Ciarpillini, R.A. Stachnik, R.J. Salawitch, H.A. Michelsen**, Simultaneous measurements of stratospheric HO_x, NO_x, and C_x: Comparison with a photochemical model, *Journal of Geophysical Research*, 101, 9031-9043, 1996
- [Chapman] **Chapman, S.**, On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere, *Phylos. Mag.*, 10,369, 1930
- [Chin, 1992] **Chin, G.**, Optical Pumped Submillimeter Laser Heterodyne Receivers: Astrophysical Observations and Recent Technical Developments, *Proceedings of the IEEE, Special Issue on Terahertz Technology*, 80, 11, 1788, 1992
- [Chipperfield *et al.*, 1996] **Chipperfield, M.P., M.L. Santee, L. Froidevaux, G.L. Manney, W.G. Read, J.W. Waters, A.E. Roche, and J.M. Russell**, Analysis of UARS data in the southern polar vortex in September 1992 using a chemical transport model, *J. Geophys. Res.*, 101, D13, 18,861-18,881, 1996
- [Chipperfield *et al.*, 1997] **Chipperfield, M.P., P. Good, A.M. Lee, J.A.Pyle, J. Sessler, D.W. Arlander, L.M. Bartlett, C.E. Blom, J.P. Burrows, M. Eisinger, A. Engel, B. Galle, N. Glatthor, F. Goutail, M. Höpfner, J. Mees, J. Mellqvist, K.A. McKinney, H. Oehlhaf, J.M. Pierson, M. Pirre, U. Raffalski, J.B. Renard, A. Richter, C. Robert, U. Schmidt, B.M. Sinnhuber, D.W. Toohey, J. Urban, G. Vaughan, J.W. Waters, G. Wetzels, F. Wittrock, J. Wohlgemuth**, Comparison of SESAME Data with a 3D Chemical Transport Model, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 1997

- [Clarmann *et al.*, 1995] **von Clarmann, T., A. Linden, H. Oelhaf, H. Fischer, F. Friedl-Vallon, C. Piesch, M. Seefeldner, W. Völker, R. Bauer, A. Engel, U. Schmid**, Determination of the stratospheric organic chlorine budget in the spring arctic vortex from Mipas B limb emission spectra and air sampling experiments, *Journal of Geophysical research*, Vol. 100, No. D7, Pages 13,979-13997, July 20, 1995
- [Clough *et al.*, 1986] **Clough, S.A., F.X. Kneizys, E.P. Shettle, and G.P. Anderson**, Atmospheric Radiance and Transmittance: FASCOD2, *American Meteorological Society, Boston, Mass., Sixth Conference on Atmospheric Radiation, Williamsburgh (Va.), May 13-16, 1986*
- [Clough *et al.*, 1989] **Clough, S.A., F.X. Kneizys, and R.W. Davies**, Line shape and the water vapor continuum, *Atmos. Res.*, 23, 229, 1989
- [Cohen & OH, 1994] **J.J. Oh and E.A. Cohen**, Pressure Broadening of ClO by N₂ and O₂ near 204 and 649 GHz and New Frequency Measurements between 632 and 725 GHz, *J.Q.S.R.T.*, 52, 151-156, 1994,
- [Conway *et al.*, 1996] **Conway, R.R., M.H. Stevens, J.G. Cardon, S.E. Zasadil, C.M. Brown, J.S. Morrill, and G.H. Mount**, Satellite measurements of hydroxyl in the mesosphere, *Geophysical Research Letters*, 23, No. 16, 2093-2096, 1996
- [Crewell & Nett, 1992] **Crewell, S. & H. Nett**, Measurements of the Single Sideband Suppression for a 650 GHz Heterodyne Receiver, *Proceedings of the Third International Symposium on Space Terahertz Technology, University of Michigan, Ann Arbor, March 24-26, 1992*
- [Crewell, 1993] **Crewell, S.**, Submillimeter-Radiometrie mit einem flugzeuggetragenen Empfänger zur Messung atmosphärischer Spurenstoffe, *Promotionsarbeit, Universität Bremen, Verlag Shaker, Aachen, 1993*
- [Crewell *et al.*, 1994] **Crewell, S., P. Hartogh, K. Künzi, H. Nett, and T. Wehr**, Aircraft measurements of ClO and HCl during EASOE 1991/92, *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 21, No. 13, Pages 1267-1270, June 22, 1994
- [Crewell *et al.*, 1995] **Crewell, S., R. Fabian, K. Künzi, H. Nett, W. Read, J. Waters, and T. Wehr**, Comparison of ClO measurements by airborne and spaceborne microwave radiometers in the Arctic winter stratosphere 1993, *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 22, No. 12, Pages 1489-1492, June 15, 1995
- [Crewell *et al.*, 1996] **Crewell, S., D. Cheng, R.L. de Zafra, and C. Trimble**, Millimeter wave spectroscopic measurements over the South Pole, I: A study of stratospheric dynamics using N₂O observations, *J. Geophys. Res.*, 100, 20,839-20,20844, 1996

- [Crowe, 1992] **Crowe, T.W., R.J. Mattauch, H.P. Röser, W.L. Bishop, W.C.B. Peatman, and X. Liu**, GaAs Schottky Diodes for THz Mixing Applications, *Proceedings of the IEEE, Special Issue on Terahertz Technology*, 80, 11, 1992
- [Crutzen, 1970] **Crutzen, P.J.**, The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content, *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, 96, 320, 1970
- [DASA, 1994] Design and Construction of a High Resolution Chirp Transform Spektrometer, *Final report on ESA workpackage 2412, Submillimeter Limb Sounder Breadboarding*, 1994
- [DeMore, 1994] **DeMore, W.B., S.P. Sander, D.M. Golden, R.F. Hampson, M.J. Kurylo, C.J. Howard, A.R. Ravishankara, C.E. Kolb, and M.J. Molina**, Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling, *JPL Publ., Evaluation 11*, 94-26, 1994
- [Deters, 1996] **Deters, Bernd**, Bestimmung von Absorptionsspektren atmosphärisch relevanter Bromverbindungen im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich, *Promotionsarbeit, Universität Bremen, Verlag Civillier, Göttingen*, 1996
- [Dicken, 1995] **Dicken, D., A. von Engeln, K. Künzi**, ESA Intercomparison Campaign of Forward Calculations - Final report, Volumes I+II, *Institute of Remote Sensing, University of Bremen, Februar 1995*
- [Dierichs et al., 1993] **Dierichs, M.M.T.M., R.A. Panhuyzen, C.E. Honingh, M.J. de Boer, and T.M. Klapwijk**, Submicron niobium junctions for submillimeter-wave mixers, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 62, Pages 774-776, 1993
- [Dobson] **Dobson, G.M.B.**, A photoelectric spectrophotometer for measuring the amount of atmospheric ozone, *Proc. Phys. Soc. London*, Vol. 43, pp 324-339, 1931
- [Douglass et al., 1995] **Douglass, Anne R., Mark R. Schoeberl, Richard S. Stolarski, J.W. Waters, James M. Russell, Aidan E. Roche, and Steven T. Massie**, Inter-hemispheric differences in springtime production of HCl and ClONO₂ in the polar vortices, *Journal of Geophysical research*, Vol. 100, No. D7, Pages 13,967-13,978, July 20, 1995
- [Drayson, 1976] **Drayson, S.R.**, Rapid Computation of the Voigt Profile, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Vol. 16, Page 611, 1976
- [Elachi] **Elachi, Charles**, Introduction to the Physics and Techniques of Remote Sensing, *Wiley & Sons, New York*

- [Engel et al., 1995] **Engel, A., R. Bauer, U. Schmidt, K. Carslaw, and R.A. Stachnik**, Simultaneous observations of chlorine source gases and reactive chlorine compounds in the Arctic stratosphere using balloonborne instrumentation, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*
- [Emerson & Cuming] **Eccosorb-AN**, Emerson & Cuming microwave products, *Technical Bulletin, Grace N.V., Nivjerstraat 7, 2260 Westerloo, Belgium*
- [Eriksson, 1996] **Eriksson, J.E.**, Microwave Remote Sensing of Ozone and other Species in the Middle Atmosphere, *School of Electrical and Computer Engineering, Technical Report No. 228L, Chalmers University of Technology, Göteborg, 1996*
- [Estec, 1992] Development of Limb-Sounder critical receiver technologies for remote sensing of the atmosphere, *Final report, Doc. LS-FR-MBB-2000-01, Estec Contract No. 8742/90/NL/PB (SC), März 1992*
- [EU, 1997 (a)] European research in the Stratosphere: The contribution of EASOE and SESAME to our current understanding of the ozone layer, *European Commission, EUR 16986 EN, Bundesanzeiger Verlag, 1997*
- [EU, 1997 (b)] Third successive winter with large ozone loss in the Arctic stratosphere, *Press release, European Commission, DG XII Unit D-1, May 5, 1997*
- [Farman et al., 1985] **Farman, J.C., B.G. Gardiner, and J.D. Shanklin**, Large Losses of Total Ozone in Antarctica Reveal Seasonal ClO_x/NO_x Interaction, *Nature 315, 206-210, 1985*
- [Fabian] **Fabian, Peter**, *Atmosphäre und Umwelt, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1992*
- [Fischer & Oelhaf, 1996] **Fischer H., and H. Oelhaf**, Remote sensing of vertical profiles of atmospheric trace constituents with MIPAS limb-emission spectrometers, *Applied Optics, Vol. 35, No. 16, June 1996*
- [Fleig et al., 1983] **Fleig, A.J., D.F. Heath, K.F. Klenk, N. Oslik, K.D. Lee, H. Park, P.K. Bhartia, and D. Gordon**, User's guide for the solar backscattered ultraviolet (SBUV) and the total ozone mapping spectrometer (TOMS) RUT-S and RUT-T data sets: October 31, 1978, to November 1, 1980, *NASA Reference publications, 11/12, 1-1-2-17, 1983*
- [Franke, 1995] **Franke, B.**, Bestimmung von stratosphärischen ClO - und HCl -Höhenprofilen aus flugzeuggestützten Submillimeter-Messungen, *Diplomarbeit, Universität Bremen, 1995*

- [Frerick, 1995] **Frerick, J.**, Die Stabilität eines weltraumqualifizierten akusto-optischen Spektrometers, *Promotionsarbeit, Universität Köln, 1995*
- [Fulde, 1976] **Fulde, Joachim**, Theoretische und numerische Grundlagen für die Mikrowellen Radiometrische Untersuchung der Atmosphäre, *Dissertation, Bern, 1976*
- [Furashov et al., 1989] **Furashov, N.I., V. Yu. Katkov, and B.A. Svertlov**, Submillimetre spectrum of the atmospheric water vapor absorption - some experimental results, *ICAP 89, IEE Conf. Publ., 301:310-311, 1989*
- [von der Gathen et al., 1995] **von der Gathen, P., H. Gernandt, R. Neuber, M. Rex**, Ozone deficits in the lower and middle stratosphere of the Arctic polar vortex, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*
- [Goldsmith, 1992] **Goldsmith, P.F.**, Quasi-Optical techniques, *Proceedings of the IEEE, Special issue on Terahertz Technology, 1992*
- [Goody & Yung] **Goody, R.M. and Y.L. Yung**, Atmospheric Radiation - Theoretical Basis, *Oxford University Press, New York, Oxford, Second edition 1989*
- [Hartogh, 1989] **Hartogh, P.**, Chirptransformations-Spektrometer für die passive Mikrowellenradiometrie: Messung der 142 GHz Emissionslinie des atmosphärischen Ozons, *Promotionsarbeit, Max-Planck-Institut für Aeronomie Katlenburg-Lindau, MPAE-W-66-90-13, 1989*
- [Hausamann et al., 1997] **Hausamann, D., B. Kerridge**, OLGA: OH Limb Sounder on GEOPHYSIKA, *Proposal to CEC, 1997*
- [Hawkins et al., 1983] **Hawkins et al.**, *JQSRT, 29,N6,p543, 1983*
- [Holton] **Holton, James R.**, An Introduction to Dynamic Meteorology, *Academic Press, San Diego, New York, Boston, London, Sydney, Tokyo, Toronto, Third edition 1992*
- [Iribarne] **Iribarne, Julio Victor**, Atmospheric Physics, *Kluwer Academic Publishers Group, Dordrecht (Holland), 1980*
- [Khalil et al., 1993] **Khalil, M.A.K., R.A. Rasmussen, R. Gunawardena**, Atmospheric Methyl Bromide: Trends and Global Mass Balance, *Journal of Geophysical research, 98, D2, 2887, 1993*
- [Klein, 1993] **Klein, U.**, Aufbau und Betrieb eines breitbandigen, bodengestützten Millimeterwellen-Radiometers zur Messung atmosphärischer Spurenstoffe, *Promotionsarbeit, Universität Bremen, Verlag Shaker, Aachen, 1993*

- [Kraus] **Kraus, John D.**, Radio Astronomy, McGraw-Hill Book company, New York, 1966
- [Künzi & Langen, 1991] **Künzi, K. & Langen, J.**, Microwave Radiometrie in Atmospheric Research, in: *Coherent detection techniques at millimeter wavelength and their applications*, Les Houches series, pp 371-383, Nova Science Publishers, New York, 1991
- [Lait, 1994] **Lait, L.R.**, An Alternative Form for Potential Vorticity, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 51 (12), 1754-1759, 1994
- [Lefevre et al., 1994] **Lefevre, F., G.P. Brasseur, I. Folkins, A.K. Smith, and P. Simon**, Chemistry of the 1991-1992 stratospheric winter: Three-dimensional model simulations, *Journal of Geophysical research*, Vol. 99, No. D4, Pages 8183-8195, April 20, 1994
- [Liebe, 1993] **Liebe, H.J., G.A. Hufford, and M.G. Cotton**, Propagation modeling of moist air and suspended water/ice particles at frequencies below 1000 GHz, *AGARD 52nd Specialists' Meeting of the Electromagnetic Wave Propagation Panel, Palma de Mallorca, Spain, 17-21 May, 1993*
- [Manney et al., 1996] **Manney, G.L., M.L. Santee, L. Froidevaux, J.W. Waters, and R.W. Zurek**, Polar vortex conditions during the 1995-96 Arctic winter: Meteorology and MLS ozone, *Geophysical Research Letters*, Vol. 23, No.22, Pages 3203-3206, November 1996
- [Martin & Puppelt, 1969] **Martin, D. H., and E. Puppelt**, Polarised Interferometric Spectrometry for the Millimetre and Submillimetre Spectrum, *Infrared Physics*, 1969, Vol. 10, pp. 105-109, Pergamon Press
- [McElroy et al., 1986] **McElroy, M.B., R.J. Salawitch, S.C. Wofsy, and J.A. Logan**, Antarctic ozone hole: Reductions due to synergistic interactions of chlorine and bromine, *Nature* 321, 759-763, 1986
- [McPherson et al., 1979] **McPherson, R.D., K.H. Bergman, R.E. Kistler, G.E. Rasch, and D.S. Gordon**, The NMC operational global data assimilation system, *Mon. Wea. Rev.*, 107, pages 1445-1461, 1979
- [Mees et al., 1994] **Mees, J., S. Crewell, Th. de Graauw, and K. Künzi**, Spectroscopic Measurements in the atmosphere at sub-mm Wavelength, *Final report, ESTEC-contract No. 10655/93/NL/SF, IUP Bremen/SRON Groningen, April 1994*
- [Mees et al., 1995] **Mees, J., S. Crewell, H. Nett, G. de Lange, H. van de Stadt, J.J. Kuipers, and R.A. Panhuyzen**, ASUR – An Airborne SIS Receiver for Atmospheric Measurements of Trace Gases at 625 to 760 GHz, *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, Vol. 43, No. 11, November 1995

- [Mellmann, 1996] **Mellmann, G.**, Optimierung eines flugzeuggetragenen 600 GHz-Radiometers und Bestimmung von ClO-Säulendichten aus Messungen der SESA-ME III Kampagne, *Diplomarbeit, Universität Bremen, 1996*
- [Molina & Rowland, 1974] **Molina, M.J., and F.S. Rowland**, Stratospheric sink for Chlorofluoromethanes, Chlorine atom catalysed destruction of Ozone, *Nature*, 249, 810, 1974
- [Molina & Molina, 1987] **Molina, L.T., and M.J. Molina**, Production of Cl₂O₂ from the self-reaction of the ClO radical, *J. Phys. Chem.*, 91, 433-436, 1987
- [Montzka et al., 1996] **Montzka, S.A., J.H. Butler, R.C. Myers, T.M. Thompson, T.H. Swanson, A.D. Clarke, L.T. Lock, and J.W. Elkins**, Decline in the Tropospheric Abundance of Halogen from Halocarbons: Implications for Stratospheric Ozone Depletion, *Science*, Vol. 272, pp 1318–1322, 31 May 1996
- [Müller et al., 1995] **Müller, R., P.J. Crutzen, J.U. Groöß, Ch. Brühl, J.M. Russell, A.F. Tuck**, HALOE-UARS observation of ozone depletion in the Arctic in 1994-1995, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*
- [Müller et al., 1996] **Müller, R., P.J. Crutzen, J.U. Groöß, Ch. Brühl, J.M. Russell, A.F. Tuck**, Chlorine activation and ozone depletion in the Arctic vortex: Observation by the Halogen Occultation Experiment on the Upper Atmosphere Research Satellite, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 101, No. D7, Pages 12,531-12,554, 1996
- [Müller et al., 1997] **Müller, R., P.J. Crutzen, J.U. Groöß, Ch. Brühl, J.M. Russell III, H. Gernandt, D.S. McKenna, and A.F. Tuck**, Severe chemical ozone loss in the Arctic during the winter of 1995-1996, *Nature*, Vol. 389, Pages 709-712, October 16, 1997
- [Nash, 1996] **Nash, E.R., P.A. Newman, J.E. Rosenfield, and M.R. Schoeberl**, An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity, *Journal of Geophysical research*, Vol. 101, No. D5, Pages 9471-9478, April 27, 1996
- [Nett, 1989] **Nett, H.**, Die Eigenschaften eines GaAs-Schottky-Dioden-Mischers bei kurzen Submillimeter-Wellenlängen, *Promotionsarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 1989*
- [Newman et al., 1993] **Newman, P.A., L.R. Lait, M.R. Schoeberl, E.R. Nash, K.K. Kelly, D.W. Fahey, R.M. Nagatani, D.W. Toohey, L.M. Avallone, and J.G. Anderson**, Stratospheric meteorological conditions in the Arctic polar vortex 1991 to 1992, *Science* 261, 1143-1146, 1993

- [NOAA, 1997] Angell, J.K., Gelman, M.E., Hofman, D., Long C.S., Miller A.J., Nagatani, R.M., Oltmans, S., Planet, W.G., Solomon, S., Northern Hemisphere Winter Summary 1996-97, Selected Indicators of Stratospheric Climate, *National Oceanic and Atmospheric Administration, Climate Prediction Center, April 1997*
- [Oelhaf et al., 1995] Oelhaf, H., G. Wetzel, T. von Clarmann, M. Schmidt, J.B. Renard, M. Pirre, E. Lateltin, P. Amedieu, C. Phillips, F. Goutail, J-P. Pommereaux, Y. Kondo, T. Sugita, H. Nakajima, M. Koike, W.J. Williams, F.C. Murray, P. Sullivan, A. Engel, U. Schmidt, and A. Lee, Correlative balloon measurements of the vertical distribution of N₂O, NO, NO₂, NO₃, HNO₃, N₂O₅, ClONO₂, and total reactive NO_x inside the polar vortex during SESAME, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*
- [Oelhaf, 1997] Oelhaf, H., A. Goede, H. Fischer, B. Kerridge, K. Künzi, M. Pirre, HIMSPEC: High and middle latitude speciation of the nitrogen, chlorine, and hydrogen chemical families by airborne measurements, *Proposal to CEC, 1997*
- [Park & Carli, 1991] Park, J.H., and B. Carli, Spectroscopic Measurement of HO₂, H₂O₂, and OH in the stratosphere *Journal of Geophysical Research*, 96, D12, 22535-22541, 1991
- [Peter, 1994] Peter, R., P. Bodenmann, L. Gerber and N. Kämpfer, European Stratospheric Monitoring Stations II - Final Report, *Research Report of the Institute of Applied Physics No. 94-1, University of Bern, Switzerland, June 1994*
- [Pickett & Peterson, 1992] Pickett, H.M. and D.P. Peterson, Far-IR Fabry Perot spectrometer for OH measurements, *SPIE, Vol. 1715, Optical methods in Atmospheric Chemistry, Pages 451-456, 1992*
- [Pickett & Peterson, 1996] Pickett, H.M. and D.P. Peterson, Comparison of measured OH with prediction, *Journal of Geophysical Research*, 101, 16789-16769, 1996
- [Pickett et al., 1991] Pickett, H.M., R.L. Poynter, and E.A. Cohen, Submillimeter, millimeter, and microwave spectral line catalog, *Applied Optics*, 1985, Vol. 24, No. 14, pp. 2235-2240, Revision 3, Tech. Rep. 80-23, Jet Propulsion Laboratory, 1991
- [Piramhyd, 1997] Piramhyd Retrieval study, *Final report on ESTEC/Contract No. 11719/95/NL/CN., to be published August 1997*
- [Plumb & Ko, 1992] Plumb, A.R. & M.K.W. Ko, Interrelationships between mixing ratios of long-lived stratospheric constituents, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 97, No. D9, Pages 10,145-10,156, 1992

- [Raffalski et al., 1996] **Raffalski, U. , M. Chipperfield, B.-M. Sinnhuber, B.-M., U. Klein, J. Langer, G. Schwaab, and K. Künzi**, Stratospheric ozone and chlorine monoxide and tropospheric water vapor measured at the Arctic NDSC-station Ny-Alesund, Spitsbergen, 1994-1996, *Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium L'Aquila, Italy, accepted, 1996*
- [Raffalski, 1997] **Raffalski, U.**, Messungen stratosphärischer Spurengase über Ny Alesund, Spitzbergen, mit Hilfe eines bodengebundenen Mikrowellenradiometers, *Promotionsarbeit, Universität Bremen, 1997*
- [Riceaud, 1996] **Riceaud, Ph., J. de La Noe, R. Lauque, A. Parrish**, Analysis of Stratospheric ClO Measurements Recorded by a Ground-based Radiometer Located at the Plateau de Bure, France, *Journal of Geophysical research, accepted, 1996*
- [Rex et al., 1997] **Rex, M., N.R.P. Harris, P. von der Gathen, R. Lehmann, G.O. Braathen, E. Reimer, A. Beck, M.P. Chipperfield, R. Alfier, M. Allaart, F.O'Connor, H. Dier, V. Dorokhovm, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, Z. Litynska, I.S. Mikkelsen, M. Molyneux, H. Nakane, J. Notholt, M. Rummukainen, P. Viatte, and J. Wenger**, Prolonged stratospheric ozone loss in the 1995-96 Arctic winter, *Nature, Vol. 389, Pages 835-838, October 23, 1997*
- [Roedel] **Walter Roedel**, Physik unserer Umwelt, *Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1992*
- [Rodgers, 1976] **Rodgers, C.D.**, Retrieval of Atmospheric Temperature and Composition from Remote Measurements of Thermal Radiation, *Reviews of Geophysics and Space Physics, Vol. 14, No. 4, Nov. 1976*
- [Rodgers, 1990] **Rodgers, C.D.**, Characterization and Error Analysis of Profiles Retrieved From Remote Sounding Measurements *Journal of Geophysical research, Vol. 95, No. D5, Pages 5587-5595, April 20, 1990*
- [Rosenkranz, 1993] **Rosenkranz, P.W.**, Absorption of microwaves by atmospheric gases, in *Michael A. Janssen, editor, Atmospheric Remote Sensing by Microwave Radiometry, Chapter 2, John Wiley and Sons, Inc., 1993*
- [Röser, 1991] **Röser, H.P.**, Heterodyne spectroscopy for submillimeter and far infrared wavelengths from 100 μm , to 500 μm , *Infrared Physics, 32, 385-407, 1991*
- [Rosolen et al., 1994] **Rosolen, C., P. Dierich, D. Michet, A. Lecacheux, F. Palacin, R. Robiliard, F. Rigeaud, P. Vola**, Wideband acousto optical spectrometer, *Final report on ESA workpackage 2411, Submillimeter Limb Sounder Breadboarding, 1994*

- [Rothman et al., 1992] Rothman, L.S., R.R. Gamache, R.H. Tipping, C.P. Rinsland, M.A.H. Smith, D.Ch. Benner, V.M. Devi, J.M. Flaud, C. Camy-Peyret, A. Perrin, A. Goldman, S. Massie, L.R. Brown, and R.A. Toth, The Hitran Molecular Database, Editions of 1991 and 1992, *J.Q.S.R.T.* 48, 469-507, 1992
- [Russell et al., 1993] Russell, J.M. III, L.L. Gordley, J.H. Park, S.R. Drayson, D.H. Hesketh, R.I. Cicerone, A.F. Tuck, J.E. Frederick, J.E. Harries, and P.J. Crutzen, The Halogen Occultation Instrument, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 98, No. D6, Pages 10777-10797, June 1993
- [Russell et al., 1996] Russell, J.M. III, L.E. Deaver, M. Luo, J.H. Park, L.L. Gordley, A.F. Tuck, G.C. Toon, M.R. Gunson, W.A. Traub, D.G. Johnson, K.W. Jucks, D.G. Murcray, R. Zander, I.G. Nolt, and C.R. Webster, Validation of hydrogen chloride measurements made by the Halogen Occultation Experiment from the UARS platform, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 101, No. D6, Pages 10,151-10,162, April 1996
- [Salawitch et al., 1994] Salawitch, R.J., S.C. Wofsy, P.O. Wennberg, R.C. Cohen, J.G. Anderson, D.W. Fahey, R.S. Gao, E.R. Keim, E.L. Woodbridge, R.M. Stimpfle, L.P. Koplrow, D.W. Kohn, C.R. Webster, R.D. May, L. Pfister, E.W. Gottlieb, H.A. Michelson, G.K. Yue, M.J. Prather, J.C. Wilson, C.A. Brock, H.H. Jonsson, J.E. Dye, D. Baumgardner, M.H. Proffit, M. Loewenstein, J.R. Podolske, J.W. Elkins, G.S. Dutton, E.J. Hints, A.E. Dessler, E.M. Weinstock, K.K. Kelly, K.A. Boering, B.C. Daube, K.R. Chan, S.W. Bowen, The diurnal variation of hydrogen, nitrogen, and chlorine radicals: implications for the heterogenous production of HNO₂, *Geophysical Research Letters*, Vol. 21, No.21, Pages 2551-2554, November 1994
- [Santee et al., 1996] Santee, M.L., G.L. Manney, W.G. Read, L. Froidevaux, and J.W. Waters, Polar vortex conditions during the 1995-96 Arctic winter: MLS ClO and HNO₃, *Geophysical Research Letters*, Vol. 23, No.22, Pages 3207-3210, November 1996
- [Schieder, 1995] Schieder, R., Error Optimization using Allan Variance Measurements, in preparation, 1995
- [Schmidt et al., 1994] Schmidt, U., R. Bauer, A. Engel, The variation of available chlorine, Cl_y, in the Arctic polar vortex during EASOE, *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 21, No. 13, Pages 1215-1218, June 22, 1994
- [Shindell, 1995] Shindell, D.T., Model/Measurement Comparison of Ozone Depleting Chlorine Chemistry in the Polar Stratosphere, *PhD-Thesis, State University of New York at Stony Brook*, August 1995

- [Shindell, 1996] **Shindell, D.T., and R.L. de Zafra**, Chlorine monoxide in the Antarctic spring vortex, 2. A comparison of measured and modeled diurnal cycling over McMurdo Station, 1993, *Journal of Geophysical research*, 101, D1, 1475-1487, 1996
- [Shiotani, 1992] **Shiotani, M.**, Annual, Quasi-Biennial, and El Niño- Southern Oscillation (ENSO) Time-Scale Variations in Equatorial Ozone, *Journal of Geophysical research*, 97, D7, 7625-7633, 1992
- [Sinnhuber et al., 1996] **Sinnhuber, B.-M., U. Klein, J. Langer, G. Schwaab, U. Rafalski, and K. Künzi**, On shortterm variability of Arctic stratospheric ozone, *Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium L'Aquila, Italy, accepted, 1996*
- [Sinnhuber et al., 1997] **Sinnhuber, B.-M., U. Klein, J. Langer, V. Eyring, J. Trentmann, R. Müller, H. Bovensmann, J.P. Burrows, and K.F. Künzi**, Dynamically controlled photochemistry of mid-stratospheric Ozone, *Proceedings of the fourth European workshop 22 to 26 September 1997, Schliersee, Bavaria, Germany, submitted, 1997*
- [Siddans et al., 1995] **Siddans, R., S. Claude, B. Ellison, B. Kerridge, H. Küllmann, B. Moyna, R. Munro, W.J. Reburn, J. Urban**, Constituent Retrievals from Airborne 500 GHz Measurements in SESAME Phase III, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*
- [Stimpfle, 1990] **Stimpfle, R.M., P.O. Wennberg, L.B. Labson, J.G. Anderson**, Simultaneous In Situ Measurements of OH and HO₂ in the Stratosphere, *Geophysical Research Letters*, 17, No. 11, 1905-1908, 1990
- [Stolarski et al., 1991] **Stolarski, Bloomfield, McPeters, Herman**, Total Ozone Trends Deduced from Nimbus 7 TOMS Data, *Geophysical Research Letters*, Vol.18, No.6, June 1991
- [Tarantola] **Tarantola, A.**, Inverse Problem Theory, *Elsevier Science Publishers B. V.*, 1987
- [Titz et al., 1995 (a)] **Titz, R., M. Birk, D. Hausmann, R. Nitsche, F. Schreier, J. Urban, H. Küllmann, H.P. Röser**, Observation of stratospheric OH at 2.5 THz with an airborne heterodyne system, *Infrared Phys. Technol.* 36, Pages 883-891, 1995
- [Titz et al., 1995 (b)] **Titz, R., M. Birk, R. Nitsche, F. Schreier, G. Wagner**, Stratospheric OH measurements with a 2.5 THz heterodyne Spectrometer, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*

- [Toon et al., 1989] **Toon, Owen B., C.P. Mackay, T.P. Ackerman, and K. Santhanam**, Rapid Calculation of Radiative Heating Rates and Photodissociation Rates in Inhomogeneous Multiple Scattering Atmospheres, *Journal of Geophysical research*, Vol. 94, No. D13, pp 16287-16301, 1989
- [Trentmann, 1997] **Trentmann, J.**, Entwicklung eines photochemischen Atmosphärenmodells, *Diplomarbeit, Universität Bremen*, 1997
- [Urban, 1993] **Urban, J.**, Bestimmung des Atmosphärischen Druckes aus in Limb-Sounding-Geometrie gemessenen Emissionslinien von Spurengasen, *Diplomarbeit, Universität Bremen*, 1993
- [Urban et al., 1996] **Urban, J., M.P. Chipperfield, A. Goede, V. Eyring, H. Hetzheim, H.W. Hübers, A. de Jonge, Q. Kleipool, H. Küllmann, K. Künzi, J. Mees, G. Mellmann, G. Schwaab, P. de Valk, N. Whyborn, and J. Wohlgemuth**, Observation of stratospheric ClO, HCl, O₃, N₂O, and HO₂ at high latitudes during the winters of 1995 and 1996 with the Airborne-Submillimeter-SIS-Radiometer, *Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium L'Aquila, Italy, accepted, 1996*
- [Van Vleck & Weisskopf, 1945] **Van Vleck, J.H. & Weisskopf, V.F.**, On the Shape of Collision Broadened Lines, in: *Reviews of modern physics, Volume 17, No.2+3, April-July 1945*
- [de Valk et al., 1995] **de Valk, J.P.J.M.M., S. Crewell, B. Franke, A. de Jonge, Q. Kleipool, H. Küllmann, K. Künzi, J. Mees, J. Urban, and J. Wohlgemuth**, Four years of airborne trace gas detection in the arctic winter period with submillimeter wave radiometry, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*
- [de Valk et al., 1997] **de Valk, J.P.J.M.M., M.P. Chipperfield, S. Crewell, B. Franke, A.P.H. Goede, A. de Jonge, H. Küllmann, A.M. Lee, J. Mees, J. Urban, and J. Wohlgemuth**, Airborne Heterodyne Measurements of stratospheric ClO, HCl, O₃ and N₂O during SESAME-I over Northern Europe, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 102, No. D1, Pages 1391-1398, January 20, 1997
- [Vowinkel] **Vowinkel, B.**, Passive Mikrowellenradiometrie, *Friedr. Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft mbH, Braunschweig*, 1988
- [Waters, 1976] **Waters, J.W.**, Absorption and Emission by Atmospheric Gases, *Methods of Experimental Physics*, 12, part B, pp 142-176, 1976
- [Waters, 1992] **Waters, J.W.**, Submillimeter-Wavelength Heterodyne Spectroscopy and Remote Sensing of the Upper Atmosphere, *Proceedings of the IEEE, Special Issue on Terahertz Technology*, Pages 1679-1701, 1992

- [Waters, 1993] **Waters, J.W.**, Microwave Limb Sounding, in Michael A. Janssen, editor, *Atmospheric Remote Sensing by Microwave Radiometry*, Chapter 8, John Wiley and Sons, Inc., 1993
- [Wayne] **Wayne, Richard P.**, *Chemistry of Atmospheres* Clarendon Press, Oxford, Second edition 1991
- [Wehr et al., 1994] **Wehr, T., S. Crewell, K. Künzi, and J. Urban**, Detection of Atmospheric Chlorine-Compounds with an Airborne Submillimeter receiver, *Proceedings of the International Geoscience and Remote Sensing Symposium IGARSS, IEEE Catalog number 94CH3378-7, Vol. III, August 8-12, 1994*
- [Wehr et al., 1995] **Wehr, T., S. Crewell, K. Künzi, J. Langen, H. Nett, and J. Urban**, Remote sensing of ClO and HCl over northern Scandinavia in winter 1992 with an airborne submillimeter radiometer, *Journal of Geophysical research*, Vol. 100, No. D10, Pages 20,957-20,968, October 20, 1995
- [Wehr, 1996] **Wehr, T.**, Inversion atmosphärischer Parameter aus Submillimeter- und Millimeterwellen-Spektren, *Promotionsarbeit, Universität Bremen, 1996*
- [Wengler, 1992] **Wengler, Michael J.**, Submillimeter-Wave detection with Superconducting Tunnel Diodes, *Proceedings of the IEEE, Special Issue on Terahertz Technology, Pages 1810-1826, 1992*
- [Whyborn et al., 1996] **Whyborn, N.D., J.F. Golstein, W. Hulshoff, A. de Jonge, Q. Kleipool, H. Küllmann, J. Mees, H.H.A. Schaeffer, and J. Urban**, An airborne SIS receiver for atmospheric research, *Proc. 30th ESLAB Symp., Submillimetre and Far-Infrared Space Instrumentation, 24-26 September 1996, Noordwijk, The Netherlands, ESA SP-388, December 1996*
- [Wirth & Renger, 1996] **Wirth, M. and W. Renger**, Evidence of large scale ozone depletion within the arctic polar vortex 1994/95 based on airborne lidar measurements, *Geophysical Research Letters*, 23, 813-816, 1996
- [Wohlgemuth et al., 1995] **Wohlgemuth, J., B. Franke, A. de Jonge, Q. Kleipool, H. Küllmann, K. Künzi, A.M. Lee, J. Mees, G. Mellmann, J. Urban, and P. de Valk**, Arctic airborne measurements of ClO and other trace gases compared to model calculations, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*
- [Wohlgemuth et al., 1996] **Wohlgemuth, J., M.P. Chipperfield, A. Goede, V. Eyring, A. de Jonge, Q. Kleipool, H. Küllmann, K. Künzi, F. Lefevre, J. Mees, G. Mellmann, J. Urban, P. de Valk, and N. Whyborn**, Airborne measurements of ClO

across the vortex edge: Data Analysis and validation of 3-D models, *Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium L'Aquila, Italy, accepted, 1996*

- [Wohlgemuth, 1997] **Wohlgemuth, J.**, Entwicklung optimaler Verfahren zur Inversion der Strahlungstransfergleichung im Submillimeterwellenbereich, *Promotionsarbeit, Universität Bremen, 1997*
- [WMO, 1995] **World Meteorological organization**, Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1994, *Global Ozone Research and Monitoring Project Report No. 37, WMO, Geneva, 1995*
- [Woodbridge et al., 1995] **Woodbridge, E.L., J.W. Elkins, D.W. Fahey, L.E. Heidt, S. Solomon, T.J. Baring, T.M. Gilpin, W.H. Pollock, S.M. Schauffler, E.L. Atlas, M.Loewenstein, J.R. Podolske, C.R. Webster, R.D. May, J.M. Gilligan, S.A. Montska, K.A. Boering, and R.J. Salawitch**, Estimates of total organic and inorganic chlorine in the lower stratosphere from in situ and flask measurements during AASE II, *Journal of Geophysical research, Vol. 100, No. D2, Pages 3057-3064, February 20, 1995*
- [Woyke et al., 1995] **Woyke, T., F. Stroh, A. Engel, D. Toohey, J. Pierson, K. McKinney, T. Mazeley, J. Margitan, and U. Schmidt**, In situ measurement of ClO and BrO in the Arctic stratosphere, first results from a new lightweight balloonborne instrument, *Air pollution research report 56, Polar stratospheric ozone, Proceedings of the third European workshop 18 to 22 September 1995, Schliersee, Bavaria, Germany*
- [de Zafra et al., 1984] **de Zafra, R.L., A. Parrish, P.M. Solomon, and J.W. Barrett**, A measurement of stratospheric HO₂ by ground-based millimeter-wave-spectroscopy, *Journal of Geophysical research, Vol. 89, No. D1, Pages 1321-1326, February 20, 1984*
- [de Zafra et al., 1989] **de Zafra, R.L., M. Jaramillo, J. Barrett, L.K. Emmons, A. Parrish, and P.M. Solomon**, New observations of a large concentration of ClO in the springtime lower stratosphere over Antarctica and its implications for ozone-depleting chemistry, *Journal of Geophysical research, Vol. 94, No. D9, Pages 11.423-11.428, 1989*

Abbildungsverzeichnis

1.1	Spektrale Verteilung von solarer und terrestrischer Strahlung	17
1.2	Strahlungsintensität oder „Radiance“	19
1.3	Vertikale Verteilung der Heiz- und Kühlraten in der Atmosphäre	21
1.4	Temperaturstruktur der Atmosphäre	22
1.5	Jahreszeitliche Variation des Totalozons	29
1.6	Anteile der organischen Quellgase des Chlors	31
1.7	Radikalaktivierung und -deaktivierung in der Stratosphäre	32
2.1	Der „Total-Power“-Empfänger	41
2.2	Kalibration beim „Total-Power“-Empfänger	43
3.1	Druck- und Dopplerlinienbreiten	57
3.2	Der Submillimeterwellenbereich	61
3.3	Vergleich zweier Strahlungstransfermodelle bei 2.5 THz	63
4.1	Der Spektralbereich 620-655 GHz	74
4.2	Schematische Darstellung des SUMAS/ASUR-Experiments	75
4.3	Blockdiagramm des ASUR-Empfängers mit Quasi-Optik und ZF	78
4.4	Blockschaltbild des ESTEC ZF-Moduls	80
4.5	Einbauplan des SUMAS/ASUR-Experiments in die FALCON	83
4.6	Seitenbandunterdrückung beim SUMAS/ASUR-Radiometer	84
4.7	Messung der Allan-Varianz für das SUMAS/ASUR-Radiometer	86
4.8	Empfängerrauschleistungen des SUMAS/ASUR-Radiometers	87

5.1	SUMAS/ASUR: Simultaninversion ClO und O ₃	97
5.2	SUMAS/ASUR: „A priori“-Profile und AKM's für HCl und O ₃	99
5.3	SUMAS/ASUR: Simultaninversion HCl und O ₃	100
5.4	SUMAS/ASUR: Inversion von N ₂ O ⁽¹⁾ bei 627.752 GHz	101
5.5	SUMAS/ASUR: Simultaninversion N ₂ O ⁽²⁾ und O ₃ (ab 1996)	103
5.6	Vergleich SUMAS/ASUR-ClO mit UARS/MLS-ClO	108
5.7	Vergleiche SUMAS/ASUR-HCl und -N ₂ O mit UARS/HALOE bzw. ASTRID und MIPAS-B	111
5.8	Vergleich SUMAS/ASUR-O ₃ mit Ozonsondendaten	113
6.1	SUMAS/ASUR: ClO- und HCl-Messungen 1996	122
6.2	SUMAS/ASUR: Flugrouten am 28.2. und 6.3.1996	125
6.3	SUMAS/ASUR: ClO am Vortexrand, 6.3.1996	126
6.4	SUMAS/ASUR: ClO am Vortexrand, 28.2.1996	127
6.5	SUMAS/ASUR: HCl und O ₃ am Vortexrand, 28.2.1996	129
6.6	SUMAS/ASUR: N ₂ O am Vortexrand, 28.2.1996	130
6.7	SUMAS/ASUR: ClO- und N ₂ O-Konturen am Vortexrand, 28.2.1996	132
6.8	SUMAS/ASUR: HCl- und O ₃ -Konturen am Vortexrand, 28.2.1996	133
6.9	SUMAS/ASUR: Flugroute am 25.2.1996	135
6.10	SUMAS/ASUR: ClO-HCl Antikorrelation im Vortex, 25.2.1996	136
6.11	SUMAS/ASUR: N ₂ O-HCl Korrelation 1996	139
6.12	SUMAS/ASUR: N ₂ O-O ₃ Korrelation 1996	141
6.13	SUMAS/ASUR: N ₂ O-ClO Korrelation 1996	142
6.14	SUMAS/ASUR: ClO- und HCl-Messungen vom 25.2.1997	145
6.15	ClO-Säulen im Vergleich der Jahre	146
6.16	HCl-Säulen im Vergleich der Jahre	147
6.17	Modellierung des Tagesganges bei 20 km und 40 km	149
6.18	SUMAS/ASUR: Flugrouten am 2.3.1996 und 5.3.1996	152
6.19	SUMAS/ASUR: Flugroute am 25.2.1997	153

6.20	SUMAS/ASUR: ClO vs SZA, 2.3.1996 und 5.3.1996	154
6.21	SUMAS/ASUR: ClO vs SZA, 25.2.1996 und 25.2.1997	155
6.22	SUMAS/ASUR: Auswahl der Tagesgang-Messungen für ClO	157
6.23	SUMAS/ASUR: Modellvergleich für 20 km	159
6.24	SUMAS/ASUR: Modellvergleich für 40 km	161
7.1	Der Spektralbereich 2510-2540 GHz	168
7.2	SUMAS/THOMAS: Blockdiagramme	170
7.3	SUMAS/THOMAS: Messungen	174
7.4	SUMAS/THOMAS: Inversion von H ₂ O bei 2531.917 GHz	177
7.5	SUMAS/THOMAS: Inversion von OH bei 2514.321 GHz	179
A.1	Blockschaltbild der SUMAS-Filterbank	193
A.2	2.5 THz-Flugzeugfenster, Aluminiumhalterung	195
A.3	2.5 THz-Flugzeugfenster, HDPE-Einsatz	196

Tabellenverzeichnis

4.1	Spezifikationen der SUMAS-Spektrometer im Vergleich	82
5.1	SUMAS/ASUR: Auflösung und Meßfehler	105
6.1	Übersicht über die Meßkampagnen in der Arktis	116
6.2	Die SUMAS/ASUR-Meßkampagne 1996	120
6.3	Die SUMAS/ASUR-Meßkampagne 1997	144
A.1	Tabelle der ASUR-Meßfrequenzen	190
A.2	Spektrallinien im ASUR-Frequenzbereich	191
A.3	Frequenzliste der SUMAS-Filterbank	192
A.4	Spektrallinien im THOMAS-Frequenzbereich	194

Zum Schluß möchte ich mich bei meinen Kollegen aus den verschiedenen beteiligten Instituten für die erfolgreiche Zusammenarbeit im Rahmen des SUMAS/ASUR- und des SUMAS/THOMAS-Projekts bedanken. Darüberhinaus danke ich meinen Freunden für die geleistete (moralische ?) Unterstützung und insbesondere auch für die so oft erfolgte erfolgreiche Ablenkung von der Arbeit, ohne die ein Gelingen nicht möglich gewesen wäre.



Folgende Hefte der Reihe „Berichte zur Polarforschung“ sind bisher erschienen:

- * **Sonderheft Nr. 1/1981** – „Die Antarktis und ihr Lebensraum“
Eine Einführung für Besucher – Herausgegeben im Auftrag von SCAR
- Heft Nr. 1/1982** – „Die Filchner-Schelfeis-Expedition 1980/81“
zusammengestellt von Heinz Kohnen
- * **Heft-Nr. 2/1982** – „Deutsche Antarktis-Expedition 1980/81 mit FS ‚Meteor‘“
First International BIOMASS Experiment (FIBEX) – Liste der Zooplankton- und Mikronektonnetzfüge
zusammengestellt von Norbert Klages.
- Heft Nr. 3/1982** – „Digitale und analoge Krill-Echolot-Rohdatenerfassung an Bord des Forschungsschiffes ‚Meteor‘“ (im Rahmen von FIBEX 1980/81, Fahrabschnitt ANT III), von Bodo Morgenstern
- Heft Nr. 4/1982** – „Filchner-Schelfeis-Expedition 1980/81“
Liste der Planktonfänge und Lichtstärkemessungen
zusammengestellt von Gerd Hubold und H. Eberhard Drescher
- * **Heft Nr. 5/1982** – „Joint Biological Expedition on RRS ‚John Biscoe‘, February 1982“
by G. Hempel and R. B. Heywood
- * **Heft Nr. 6/1982** – „Antarktis-Expedition 1981/82 (Unternehmen ‚Eiswarte‘)“
zusammengestellt von Gode Gravenhorst
- Heft Nr. 7/1982** – „Marin-Biologisches Begleitprogramm zur Standorterkundung 1979/80 mit MS ‚Polar-sirkel‘ (Pre-Site Survey)“ – Stationslisten der Mikronekton- und Zooplanktonfänge sowie der Bodenfischerei
zusammengestellt von R. Schneppenheim
- Heft Nr. 8/1983** – „The Post-Fibex Data Interpretation Workshop“
by D. L. Cram and J.-C. Freytag with the collaboration of J. W. Schmidt, M. Mall, R. Kresse, T. Schwinghammer
- * **Heft Nr. 9/1983** – „Distribution of some groups of zooplankton in the inner Weddell Sea in summer 1979/80“
by I. Hempel, G. Hubold, B. Kaczmaruk, R. Keller, R. Weigmann-Haass
- Heft Nr. 10/1983** – „Fluor im antarktischen Ökosystem“ – DFG-Symposium November 1982
zusammengestellt von Dieter Adelung
- Heft Nr. 11/1983** – „Joint Biological Expedition on RRS ‚John Biscoe‘, February 1982 (II)“
Data of micronekton and zooplankton hauls, by Uwe Piatkowski
- Heft Nr. 12/1983** – „Das biologische Programm der ANTARKTIS-I-Expedition 1983 mit FS ‚Polarstern‘“
Stationslisten der Plankton-, Benthos- und Grundschieppnetzfüge und Liste der Probenahme an Robben und Vögeln, von H. E. Drescher, G. Hubold, U. Piatkowski, J. Plötz und J. Voß
- * **Heft Nr. 13/1983** – „Die Antarktis-Expedition von MS ‚Polarbjörn‘ 1982/83“ (Sommerkampagne zur Atka-Bucht und zu den Kraul-Bergen), zusammengestellt von Heinz Kohnen
- * **Sonderheft Nr. 2/1983** – „Die erste Antarktis-Expedition von FS ‚Polarstern‘ (Kapstadt, 20. Januar 1983 – Rio de Janeiro, 25. März 1983)“, Bericht des Fahrtleiters Prof. Dr. Gotthilf Hempel
- Sonderheft Nr. 3/1983** – „Sicherheit und Überleben bei Polarexpeditionen“
zusammengestellt von Heinz Kohnen
- * **Heft Nr. 14/1983** – „Die erste Antarktis-Expedition (ANTARKTIS I) von FS ‚Polarstern‘ 1982/83“
herausgegeben von Gotthilf Hempel
- Sonderheft Nr. 4/1983** – „On the Biology of Krill *Euphausia superba*“ – Proceedings of the Seminar and Report of the Krill Ecology Group, Bremerhaven 12.–16. May 1983, edited by S. B. Schnack
- Heft Nr. 15/1983** – „German Antarctic Expedition 1980/81 with FRV ‚Walther Herwig‘ and RV ‚Meteor‘“ – First International BIOMASS Experiment (FIBEX) – Data of micronekton and zooplankton hauls
by Uwe Piatkowski and Norbert Klages
- Sonderheft Nr. 5/1984** – „The observatories of the Georg von Neumayer Station“, by Ernst Augstein
- Heft Nr. 16/1984** – „FIBEX cruise zooplankton data“
by U. Piatkowski, I. Hempel and S. Rakusa-Suszczewski
- Heft Nr. 17/1984** – „Fahrtbericht (cruise report) der ‚Polarstern‘-Reise ARKTIS I, 1983“
von E. Augstein, G. Hempel und J. Thiede
- Heft Nr. 18/1984** – „Die Expedition ANTARKTIS II mit FS ‚Polarstern‘ 1983/84“,
Bericht von den Fahrabschnitten 1, 2 und 3, herausgegeben von D. Fütterer
- Heft Nr. 19/1984** – „Die Expedition ANTARKTIS II mit FS ‚Polarstern‘ 1983/84“,
Bericht vom Fahrabschnitt 4, Punta Arenas–Kapstadt (Ant-II/4), herausgegeben von H. Kohnen
- Heft Nr. 20/1984** – „Die Expedition ARKTIS II des FS ‚Polarstern‘ 1984, mit Beiträgen des FS ‚Valdivia‘ und des Forschungsflugzeuges ‚Falcon 20‘ zum Marginal Ice Zone Experiment 1984 (MIZEX)“
von E. Augstein, G. Hempel, J. Schwarz, J. Thiede und W. Weigel

- Heft Nr. 21/1985** – "Euphausiid larvae in plankton samples from the vicinity of the Antarctic Peninsula, February 1982" by Sigrid Marschall and Elke Mizdalski
- Heft Nr. 22/1985** – "Maps of the geographical distribution of macrozooplankton in the Atlantic sector of the Southern Ocean" by Uwe Piatkowski
- Heft Nr. 23/1985** – „Untersuchungen zur Funktionsmorphologie und Nahrungsaufnahme der Larven des Antarktischen Krills *Euphausia superba* Dana“ von Hans-Peter Marschall
- Heft Nr. 24/1985** – „Untersuchungen zum Periglazial auf der König-Georg-Insel Südshetlandinseln/Antarktika. Deutsche physiogeographische Forschungen in der Antarktis. – Bericht über die Kampagne 1983/84“ von Dietrich Barsch, Wolf-Dieter Blümel, Wolfgang Flügel, Roland Mäusbacher, Gerhard Stablein, Wolfgang Zick
- * **Heft-Nr. 25/1985** – „Die Expedition ANTARKTIS III mit FS ‚Polarstern‘ 1984/1985“ herausgegeben von Gotthilf Hempel.
- * **Heft-Nr. 26/1985** – "The Southern Ocean"; A survey of oceanographic and marine meteorological research work by Hellmer et al.
- Heft Nr. 27/1986** – „Spatpleistozäne Sedimentationsprozesse am antarktischen Kontinentalhang vor Kapp Norvegia, östliche Weddell-See“ von Hannes Grobe
- Heft Nr. 28/1986** – „Die Expedition ARKTIS III mit ‚Polarstern‘ 1985“ mit Beiträgen der Fahrtteilnehmer, herausgegeben von Rainer Gersonde
- * **Heft Nr. 29/1986** – „5 Jahre Schwerpunktprogramm ‚Antarktisforschung‘ der Deutschen Forschungsgemeinschaft.“ Rückblick und Ausblick. Zusammengestellt von Gotthilf Hempel, Sprecher des Schwerpunktprogramms
- Heft Nr. 30/1986** – "The Meteorological Data of the Georg-von-Neumayer-Station for 1981 and 1982" by Marianne Gube and Friedrich Obleitner
- Heft Nr. 31/1986** – „Zur Biologie der Jugendstadien der Notothenioidei (Pisces) an der Antarktischen Halbinsel“ von A. Kellermann
- Heft Nr. 32/1986** – „Die Expedition ANTARKTIS IV mit FS ‚Polarstern‘ 1985/86“ mit Beiträgen der Fahrtteilnehmer, herausgegeben von Dieter Fütterer
- Heft Nr. 33/1987** – „Die Expedition ANTARKTIS-IV mit FS ‚Polarstern‘ 1985/86 – Bericht zu den Fahrtabschnitten ANT-IV/3–4“ von Dieter Karl Fütterer
- Heft Nr. 34/1987** – „Zoogeographische Untersuchungen und Gemeinschaftsanalysen an antarktischem Makroplankton“ von U. Piatkowski
- Heft Nr. 35/1987** – „Zur Verbreitung des Meso- und Makrozooplanktons in Oberflächenwasser der Weddell See (Antarktis)“ von E. Boysen-Ennen
- Heft Nr. 36/1987** – „Zur Nahrungs- und Bewegungsphysiologie von *Salpa thompsoni* und *Salpa fusiformis*“ von M. Reinke
- Heft Nr. 37/1987** – "The Eastern Weddell Sea Drifting Buoy Data Set of the Winter Weddell Sea Project (WWSP)" 1986 by Heinrich Hoerber und Marianne Gube-Lehnhardt
- Heft Nr. 38/1987** – "The Meteorological Data of the Georg von Neumayer Station for 1983 and 1984" by M. Gube-Lenhardt
- Heft Nr. 39/1987** – „Die Winter-Expedition mit FS ‚Polarstern‘ in die Antarktis (ANT V/1–3)“ herausgegeben von Sigrid Schnack-Schiel
- Heft Nr. 40/1987** – "Weather and Synoptic Situation during Winter Weddell Sea Project 1986 (ANT V/2) July 16–September 10, 1986" by Werner Rabe
- Heft Nr. 41/1988** – „Zur Verbreitung und Ökologie der Seegurken im Weddellmeer (Antarktis)“ von Julian Gutt
- Heft Nr. 42/1988** – "The zooplankton community in the deep bathyal and abyssal zones of the eastern North Atlantic" by Werner Beckmann
- Heft Nr. 43/1988** – "Scientific cruise report of Arctic Expedition ARK IV/3" Wissenschaftlicher Fahrtbericht der Arktis-Expedition ARK IV/3, compiled by Jörn Thiede
- Heft Nr. 44/1988** – "Data Report for FV 'Polarstern' Cruise ARK IV/1, 1987 to the Arctic and Polar Fronts" by Hans-Jürgen Hirche
- Heft Nr. 45/1988** – „Zoogeographie und Gemeinschaftsanalyse des Makrozoobenthos des Weddellmeeres (Antarktis)“ von Joachim Voß
- Heft Nr. 46/1988** – "Meteorological and Oceanographic Data of the Winter-Weddell-Sea Project 1986 (ANT V/3)" by Eberhard Fahrbach
- Heft Nr. 47/1988** – „Verteilung und Herkunft glazial-mariner Gerölle am Antarktischen Kontinentalrand des östlichen Weddellmeeres“ von Wolfgang Oskierski
- Heft Nr. 48/1988** – „Variationen des Erdmagnetfeldes an der GvN-Station“ von Arnold Brodscholl
- * **Heft Nr. 49/1988** – „Zur Bedeutung der Lipide im antarktischen Zooplankton“ von Wilhelm Hagen
- Heft Nr. 50/1988** – „Die gezeitenbedingte Dynamik des Ekström-Schelfeises, Antarktis“ von Wolfgang Kobarg

- Heft Nr. 51/1988** – „Ökomorphologie nototheniider Fische aus dem Weddellmeer, Antarktis“ von Werner Ekau
- Heft Nr. 52/1988** – „Zusammensetzung der Bodenfauna in der westlichen Fram-Straße“ von Dieter Piepenburg
- * **Heft Nr. 53/1988** – „Untersuchungen zur Ökologie des Phytoplanktons im südöstlichen Weddellmeer (Antarktis) im Jan./Febr. 1985“ von Eva-Maria Nöthig
- Heft Nr. 54/1988** – „Die Fischfauna des östlichen und südlichen Weddellmeeres: geographische Verbreitung, Nahrung und trophische Stellung der Fischarten“ von Wiebke Schwarzbach
- Heft Nr. 55/1988** – “Weight and length data of zooplankton in the Weddell Sea in austral spring 1986 (Ant V/3)” by Elke Mizdalski
- Heft Nr. 56/1989** – “Scientific cruise report of Arctic expeditions ARK IV/1, 2 & 3” by G. Krause, J. Meincke und J. Thiede
- Heft Nr. 57/1989** – „Die Expedition ANTARKTIS V mit FS ‚Polarstern‘ 1986/87“ Bericht von den Fahrtabschnitten ANT V/4–5 von H. Miller und H. Oerter
- * **Heft Nr. 58/1989** – „Die Expedition ANTARKTIS VI mit FS ‚Polarstern‘ 1987/88“ von D. K. Fütterer
- Heft Nr. 59/1989** – „Die Expedition ARKTIS V/1a, 1b und 2 mit FS ‚Polarstern‘ 1988“ von M. Spindler
- Heft Nr. 60/1989** – „Ein zweidimensionales Modell zur thermohalinen Zirkulation unter dem Schelfeis“ von H. H. Hellmer
- Heft Nr. 61/1989** – „Die Vulkanite im westlichen und mittleren Neuschwabenland, Vestfjella und Ahlmannryggen, Antarktika“ von M. Peters
- * **Heft-Nr. 62/1989** – “The Expedition ANTARKTIS VII/1 and 2 (EPOS I) of RV ‘Polarstern’ in 1988/89”, by I. Hempel
- Heft Nr. 63/1989** – „Die Eisalgenflora des Weddellmeeres (Antarktis): Artenzusammensetzung und Biomasse sowie Ökophysiologie ausgewählter Arten“ von Annette Bartsch
- Heft Nr. 64/1989** – “Meteorological Data of the G.-v.-Neumayer-Station (Antarctica)” by L. Helmes
- Heft Nr. 65/1989** – „Expedition Antarktis VII/3 in 1988/89“ by I. Hempel, P. H. Schalk, V. Smetacek
- Heft Nr. 66/1989** – „Geomorphologisch-glaziologische Detailkartierung des arid-hochpolaren Borgmassivet, Neuschwabenland, Antarktika“ von Karsten Brunk
- Heft-Nr. 67/1990** – „Identification key and catalogue of larval Antarctic fishes“, edited by Adolf Kellermann
- Heft-Nr. 68/1990** – „The Expedition Antarktis VII/4 (Epos leg 3) and VII/5 of RV ‘Polarstern’ in 1989“, edited by W. Arntz, W. Ernst, I. Hempel
- Heft-Nr. 69/1990** – „Abhängigkeiten elastischer und rheologischer Eigenschaften des Meerereises vom Eisgefüge“, von Harald Hellmann
- Heft-Nr. 70/1990** – „Die beschalten benthischen Mollusken (Gastropoda und Bivalvia) des Weddellmeeres, Antarktis“, von Stefan Hain
- Heft-Nr. 71/1990** – „Sedimentologie und Paläomagnetik an Sedimenten der Maudkuppe (Nordöstliches Weddellmeer)“, von Dieter Cordes.
- Heft-Nr. 72/1990** – „Distribution and abundance of planktonic copepods (Crustacea) in the Weddell Sea in summer 1980/81“, by F. Kurbjeweit and S. Ali-Khan
- Heft-Nr. 73/1990** – „Zur Frühdiagenese von organischem Kohlenstoff und Opal in Sedimenten des südlichen und östlichen Weddellmeeres“, von M. Schlüter
- Heft-Nr. 74/1990** – „Expeditionen ANTARKTIS-VIII/3 und VIII/4 mit FS ‚Polarstern‘ 1989“ von Rainer Gersonde und Gotthilf Hempel
- Heft-Nr. 75/1991** – „Quartäre Sedimentationsprozesse am Kontinentalhang des Süd-Orkey-Plateaus im nordwestlichen Weddellmeer (Antarktis)“, von Sigrun Grünig
- Heft-Nr. 76/1990** – „Ergebnisse der faunistischen Arbeiten im Benthal von King George Island (Südshetlandinseln, Antarktis)“, von Martin Rauschert
- Heft-Nr. 77/1990** – „Verteilung von Mikroplankton-Organismen nordwestlich der Antarktischen Halbinsel unter dem Einfluß sich ändernder Umweltbedingungen im Herbst“, von Heinz Klöser
- Heft-Nr. 78/1991** – „Hochauflösende Magnetostratigraphie spätquartärer Sedimente arktischer Meeresgebiete“, von Norbert R. Nowaczyk
- Heft-Nr. 79/1991** – „Ökophysiologische Untersuchungen zur Salinitäts- und Temperaturtoleranz antarktischer Grünalgen unter besonderer Berücksichtigung des β -Dimethylsulfoniumpropionat (DMSP) - Stoffwechsels“, von Ulf Karsten
- Heft-Nr. 80/1991** – „Die Expedition ARKTIS VII/1 mit FS ‚Polarstern‘ 1990“, herausgegeben von Jörn Thiede und Gotthilf Hempel
- Heft-Nr. 81/1991** – „Paläoglaziologie und Paläozeanographie im Spätquartär am Kontinentalrand des südlichen Weddellmeeres, Antarktis“, von Martin Melles
- Heft-Nr. 82/1991** – „Quantifizierung von Meereseigenschaften: Automatische Bildanalyse von Dünnschnitten und Parametrisierung von Chlorophyll- und Salzgehaltsverteilungen“, von Hajo Eicken

- Heft-Nr. 83/1991** – „Das Fließen von Schelfeisen - numerische Simulationen mit der Methode der finiten Differenzen“, von Jürgen Determann
- Heft-Nr. 84/1991** – „Die Expedition ANTARKTIS-VIII/1-2, 1989 mit der Winter Weddell Gyre Study der Forschungsschiffe „Polarstern“ und „Akademik Fedorov“, von Ernst Augstein, Nikolai Bagriantsev und Hans Werner Schenke
- Heft-Nr. 85/1991** – „Zur Entstehung von Unterwassereis und das Wachstum und die Energiebilanz des Meereises in der Atka Bucht, Antarktis“, von Josef Kipfstuhl
- Heft-Nr. 86/1991** – „Die Expedition ANTARKTIS-VIII mit „FS Polarstern“ 1989/90. Bericht vom Fahrtabschnitt ANT-VIII / 5“, von Heinz Miller und Hans Oerter
- Heft-Nr. 87/1991** – „Scientific cruise reports of Arctic expeditions ARK VI / 1-4 of RV „Polarstern“ in 1989“, edited by G. Krause, J. Meincke & H. J. Schwarz
- Heft-Nr. 88/1991** – „Zur Lebensgeschichte dominanter Copepodenarten (*Calanus finmarchicus*, *C. glacialis*, *C. hyperboreus*, *Metridia longa*) in der Framstraße“, von Sabine Diel
- Heft-Nr. 89/1991** – „Detaillierte seismische Untersuchungen am östlichen Kontinentalrand des Weddell-Meeress vor Kapp Norvegia, Antarktis“, von Norbert E. Kaul
- Heft-Nr. 90/1991** – „Die Expedition ANTARKTIS-VIII mit FS „Polarstern“ 1989/90. Bericht von den Fahrtabschnitten ANT-VIII/6-7“, herausgegeben von Dieter Karl Fütterer und Otto Schrems
- Heft-Nr. 91/1991** – „Blood physiology and ecological consequences in Weddell Sea fishes (Antarctica)“, by Andreas Kunzmann
- Heft-Nr. 92/1991** – „Zur sommerlichen Verteilung des Mesozooplanktons im Nansen-Becken, Nordpolarmeer“, von Nicolai Mumm
- Heft-Nr. 93/1991** – „Die Expedition ARKTIS VII mit FS „Polarstern“, 1990. Bericht vom Fahrtabschnitt ARK VII/2“, herausgegeben von Gunther Krause
- Heft-Nr. 94/1991** – „Die Entwicklung des Phytoplanktons im östlichen Weddellmeer (Antarktis) beim Übergang vom Spätwinter zum Frühjahr“, von Renate Scharek
- Heft-Nr. 95/1991** – „Radioisotopenstratigraphie, Sedimentologie und Geochemie jungquartärer Sedimente des östlichen Arktischen Ozeans“, von Horst Bohrmann
- Heft-Nr. 96/1991** – „Holozäne Sedimentationsentwicklung im Scoresby Sund, Ost-Grönland“, von Peter Marienfeld
- Heft-Nr. 97/1991** – „Strukturelle Entwicklung und Abkühlungsgeschichte der Heimefrontfjella (Westliches Dronning Maud Land/Antarktika)“, von Joachim Jacobs
- Heft-Nr. 98/1991** – „Zur Besiedlungsgeschichte des antarktischen Schelfes am Beispiel der Isopoda (Crustacea, Malacostraca)“, von Angelika Brandt
- Heft-Nr. 99/1992** – „The Antarctic ice sheet and environmental change: a three-dimensional modelling study“, by Philippe Huybrechts
- * **Heft-Nr. 100/1992** – „Die Expeditionen ANTARKTIS IX/1-4 des Forschungsschiffes „Polarstern“ 1990/91“, herausgegeben von Ulrich Bathmann, Meinhard Schulz-Baldes, Eberhard Fahrbach, Victor Smetacek und Hans-Wolfgang Hubberten
- Heft-Nr. 101/1992** – „Wechselbeziehungen zwischen Schwermetallkonzentrationen (Cd, Cu, Pb, Zn) im Meewasser und in Zooplanktonorganismen (Copepoda) der Arktis und des Atlantiks“, von Christa Pohl
- Heft-Nr. 102/1992** – „Physiologie und Ultrastruktur der antarktischen Grünalge *Prasiola crisper* ssp. *antarctica* unter osmotischem Streß und Austrocknung“, von Andreas Jacob
- Heft-Nr. 103/1992** – „Zur Ökologie der Fische im Weddellmeer“, von Gerd Hubold
- Heft-Nr. 104/1992** – „Mehrkanalige adaptive Filter für die Unterdrückung von multiplen Reflexionen in Verbindung mit der freien Oberfläche in marinen Seismogrammen“, von Andreas Rosenberger
- Heft-Nr. 105/1992** – „Radiation and Eddy Flux Experiment 1991 (REFLEX I)“, von Jörg Hartmann, Christoph Kottmeier und Christian Wamser
- Heft-Nr. 106/1992** – „Ostracoden im Epipelagial vor der Antarktischen Halbinsel - ein Beitrag zur Systematik sowie zur Verbreitung und Populationsstruktur unter Berücksichtigung der Saisonalität“, von Rüdiger Kock
- Heft-Nr. 107/1992** – „ARCTIC '91: Die Expedition ARK-VIII/3 mit FS „Polarstern“ 1991“, von Dieter K. Fütterer
- Heft-Nr. 108/1992** – „Dehnungsbeben an einer Störungszone im Ekström-Schelfeis nördlich der Georg-von-Neumayer Station, Antarktis. – Eine Untersuchung mit seismologischen und geodätischen Methoden“, von Uwe Nixdorf.
- Heft-Nr. 109/1992** – „Spätquartäre Sedimentation am Kontinentalrand des südöstlichen Weddellmeeres, Antarktis“, von Michael Weber.
- Heft-Nr. 110/1992** – „Sedimentfazies und Bodenwasserstrom am Kontinentalhang des nordwestlichen Weddellmeeres“, von Isa Brehme.
- Heft-Nr. 111/1992** – „Die Lebensbedingungen in den Solekanälchen des antarktischen Meereises“, von Jürgen Weissenberger.
- Heft-Nr. 112/1992** – „Zur Taxonomie von rezenten benthischen Foraminiferen aus dem Nansen Becken, Arktischer Ozean“, von Jutta Wollenburg.

- Heft-Nr. 113/1992** – „Die Expedition ARKTIS VIII/1 mit FS "Polarstern" 1991“, herausgegeben von Gerhard Kattner.
- * **Heft-Nr. 114/1992** – „Die Gründungsphase deutscher Polarforschung, 1865-1875“, von Reinhard A. Krause.
- Heft-Nr. 115/1992** – „Scientific Cruise Report of the 1991 Arctic Expedition ARK VIII/2 of RV "Polarstern" (EPOS II)“, by Eike Rachor.
- Heft-Nr. 116/1992** – „The Meteorological Data of the Georg-von-Neumayer-Station (Antarctica) for 1988, 1989, 1990 and 1991“, by Gert König-Langlo.
- Heft-Nr. 117/1992** – „Petrogenese des metamorphen Grundgebirges der zentralen Heimefrontfjella (westliches Dronning Maud Land / Antarktis)“, von Peter Schulze.
- Heft-Nr. 118/1992** – „Die mafischen Gänge der Shackleton Range / Antarktika: Petrographie, Geochemie, Isotopengeochemie und Paläomagnetik“, von Rüdiger Hotten.
- * **Heft-Nr. 119/1993** – „Gefrierschutz bei Fischen der Polarmeere“, von Andreas P.A. Wöhrmann.
- * **Heft-Nr. 120/1993** – „East Siberian Arctic Region Expedition '92: The Laptev Sea - its Significance for Arctic Sea-Ice Formation and Transpolar Sediment Flux“, by D. Dethleff, D. Nürnberg, E. Reimnitz, M. Saarloos and Y. P. Sacchenko. – „Expedition to Novaja Zemlja and Franz Josef Land with RV "Dalnie Zelentsy““, by D. Nürnberg and E. Groth.
- * **Heft-Nr. 121/1993** – „Die Expedition ANTARKTIS X/3 mit FS 'Polarstern' 1992“, herausgegeben von Michael Spindler, Gerhard Dieckmann und David Thomas.
- Heft-Nr. 122/1993** – „Die Beschreibung der Korngestalt mit Hilfe der Fourier-Analyse: Parametrisierung der morphologischen Eigenschaften von Sedimentpartikeln“, von Michael Diepenbroek.
- * **Heft-Nr. 123/1993** – „Zerstörungsfreie hochauflösende Dichteuntersuchungen mariner Sedimente“, von Sebastian Gerland.
- Heft-Nr. 124/1993** – „Umsatz und Verteilung von Lipiden in arktischen marinen Organismen unter besonderer Berücksichtigung unterer trophischer Stufen“, von Martin Graeve.
- Heft-Nr. 125/1993** – „Ökologie und Respiration ausgewählter arktischer Bodenfischarten“, von Christian F. von Dornien.
- Heft-Nr. 126/1993** – „Quantitative Bestimmung von Paläoumweltparametern des Antarktischen Oberflächenwassers im Spätquartär anhand von Transferfunktionen mit Diatomeen“, von Ulrich Zielinski.
- Heft-Nr. 127/1993** – „Sedimenttransport durch das arktische Meereis: Die rezente lithogene und biogene Materialfracht“, von Ingo Wollenburg.
- Heft-Nr. 128/1993** – „Cruise ANTARKTIS X/3 of RV 'Polarstern': CTD-Report“, von Marek Zwierz.
- Heft-Nr. 129/1993** – „Reproduktion und Lebenszyklen dominanter Copepodenarten aus dem Weddellmeer, Antarktis“, von Frank Kurbjeweit.
- Heft-Nr. 130/1993** – „Untersuchungen zu Temperaturregime und Massenhaushalt des Filchner-Ronne-Schelfeises, Antarktis, unter besonderer Berücksichtigung von Anfrrier- und Abschmelzprozessen“, von Klaus Grosfeld.
- Heft-Nr. 131/1993** – „Die Expedition ANTARKTIS X/5 mit FS 'Polarstern' 1992“, herausgegeben von Rainer Gersonde.
- Heft-Nr. 132/1993** – „Bildung und Abgabe kurzketziger halogener Kohlenwasserstoffe durch Makroalgen der Polarregionen“, von Frank Laturnus.
- Heft-Nr. 133/1994** – „Radiation and Eddy Flux Experiment 1993 (REFLEX II)“, by Christoph Kottmeier, Jörg Hartmann, Christian Wamser, Axel Bochert, Christof Lüpkes, Dietmar Freese and Wolfgang Cohrs.
- * **Heft-Nr. 134/1994** – „The Expedition ARKTIS-IX/1“, edited by Hajo Eicken and Jens Meincke.
- Heft-Nr. 135/1994** – „Die Expeditionen ANTARKTIS X/6-8“, herausgegeben von Ulrich Bathmann, Victor Smetacek, Hein de Baar, Eberhard Fahrbach und Gunter Krause.
- Heft-Nr. 136/1994** – „Untersuchungen zur Ernährungsökologie von Kaiserpinguinen (*Aptenodytes forsteri*) und Königspinguinen (*Aptenodytes patagonicus*)“, von Klemens Pütz.
- * **Heft-Nr. 137/1994** – „Die kältegeprägte Vereisungsgeschichte der Antarktis“, von Werner U. Ehrmann.
- Heft-Nr. 138/1994** – „Untersuchungen stratosphärischer Aerosole vulkanischen Ursprungs und polarer stratosphärischer Wolken mit einem Mehrwellenlängen-Lidar auf Spitzbergen (79°N, 12°E)“, von Georg Beyerle.
- Heft-Nr. 139/1994** – „Charakterisierung der Isopodenfauna (Crustacea, Malacostraca) des Scotia-Bogens aus biogeographischer Sicht: Ein multivariater Ansatz“, von Holger Winkler.
- Heft-Nr. 140/1994** – „Die Expedition ANTARKTIS X/4 mit FS 'Polarstern' 1992“, herausgegeben von Peter Lemke.
- Heft-Nr. 141/1994** – „Satellitenaltimetrie über Eis – Anwendung des GEOSAT-Altimeters über dem Ekströmisen, Antarktis“, von Clemens Heidland.
- Heft-Nr. 142/1994** – „The 1993 Northeast Water Expedition. Scientific cruise report of RV 'Polarstern' Arctic cruises ARK IX/2 and 3, USCG 'Polar Bear' cruise NEWP and the NEWLand expedition“, edited by Hans-Jürgen Hirche and Gerhard Kattner.
- Heft-Nr. 143/1994** – „Detaillierte refraktionsseismische Untersuchungen im inneren Scoresby Sund Ost-Grönland“, von Notker Fechner.
- Heft-Nr. 144/1994** – „Russian-German Cooperation in the Siberian Shelf Seas: Geo-System Laptev Sea“, edited by Heidmarie Kassens, Hans-Wolfgang Hubberten, Sergey M. Pryamikov und Rüdiger Stein.

- Heft-Nr. 180/1995** – “Biogenopal und biogenes Barium als Indikatoren für spätquartäre Produktivitätsänderungen am antarktischen Kontinentalhang, atlantischer Sektor“, von Wolfgang J. Bonn.
- Heft-Nr. 181/1995** – “Die Expedition ARKTIS X/1 des Forschungsschiffes ‚Polarstern‘ 1994“, herausgegeben von Eberhard Fahrbach.
- Heft-Nr. 182/1995** – “Laptev Sea System: Expeditions in 1994“, edited by Heidemarie Kassens.
- Heft-Nr. 183/1996** – “Interpretation digitaler Parasound Echolotaufzeichnungen im östlichen Arktischen Ozean auf der Grundlage physikalischer Sedimenteigenschaften“, von Uwe Bergmann.
- Heft-Nr. 184/1996** – “Distribution and dynamics of inorganic nitrogen compounds in the troposphere of continental, coastal, marine and Arctic areas“, by María Dolores Andrés Hernández.
- Heft-Nr. 185/1996** – “Verbreitung und Lebensweise der Aphroditiden und Polynoiden (Polychaeta) im östlichen Weddellmeer und im Lazarevmeer (Antarktis)“, von Michael Stiller.
- Heft-Nr. 186/1996** – “Reconstruction of Late Quaternary environmental conditions applying the natural radionuclides ^{230}Th , ^{10}Be , ^{231}Pa and ^{238}U : A study of deep-sea sediments from the eastern sector of the Antarctic Circumpolar Current System“, by Martin Frank.
- Heft-Nr. 187/1996** – “The Meteorological Data of the Neumayer Station (Antarctica) for 1992, 1993 and 1994“, by Gert König-Langlo and Andreas Herber.
- Heft-Nr. 188/1996** – “Die Expedition ANTARKTIS-XI/3 mit FS ‚Polarstern‘ 1994“, herausgegeben von Heinz Miller und Hannes Grobe.
- Heft-Nr. 189/1996** – “Die Expedition ARKTIS-VII/3 mit FS ‚Polarstern‘ 1990“, herausgegeben von Heinz Miller und Hannes Grobe.
- Heft-Nr. 190/1996** – “Cruise report of the Joint Chilean-German-Italian Magellan ‚Victor Hensen‘ Campaign in 1994“, edited by Wolf Arntz and Matthias Gorny.
- Heft-Nr. 191/1996** – “Leitfähigkeits- und Dichtemessung an Eisbohrkernen“, von Frank Wilhelms.
- Heft-Nr. 192/1996** – “Photosynthese-Charakteristika und Lebensstrategie antarktischer Makroalgen“, von Gabriele Weykam.
- Heft-Nr. 193/1996** – “Heterogene Reaktionen von N_2O_5 und HBr und ihr Einfluß auf den Ozonabbau in der polaren Stratosphäre“, von Sabine Seisel.
- Heft-Nr. 194/1996** – “Ökologie und Populationsdynamik antarktischer Ophiuroiden (Echinodermata)“, von Corinna Dahm.
- Heft-Nr. 195/1996** – “Die planktische Foraminifere *Neoglobobulimina pachyderma* (Ehrenberg) im Weddellmeer, Antarktis“, von Doris Berberich.
- Heft-Nr. 196/1996** – “Untersuchungen zum Beitrag chemischer und dynamischer Prozesse zur Variabilität des stratosphärischen Ozons über der Arktis“, von Birgit Heese.
- Heft-Nr. 197/1996** – “The Expedition ARKTIS-XI/2 of ‚Polarstern‘ in 1995“, edited by Gunther Krause.
- Heft-Nr. 198/1996** – “Geodynamik des Westantarktischen Riftsystems basierend auf Apatit-Spaltspuranalysen“, von Frank Lisker.
- Heft-Nr. 199/1996** – “The 1993 Northeast Water Expedition. Data Report on CTD Measurements of RV ‚Polarstern‘ Cruises ARKTIS IX/2 and 3“, by Gereon Budéus and Wolfgang Schneider.
- Heft-Nr. 200/1996** – “Stability of the Thermohaline Circulation in analytical and numerical models“, by Gerrit Lohmann.
- Heft-Nr. 201/1996** – “Trophische Beziehungen zwischen Makroalgen und Herbivoren in der Potter Cove (King George-Insel, Antarktis)“, von Katrin Iken.
- Heft-Nr. 202/1996** – “Zur Verbreitung und Respiration ökologisch wichtiger Bodentiere in den Gewässern um Svalbard (Arktis)“, von Michael K. Schmid.
- Heft-Nr. 203/1996** – “Dynamik, Rauigkeit und Alter des Meereises in der Arktis - Numerische Untersuchungen mit einem großskaligen Modell“, von Markus Harder.
- Heft-Nr. 204/1996** – “Zur Parametrisierung der stabilen atmosphärischen Grenzschicht über einem antarktischen Schelfeis“, von Dörthe Handorf.
- Heft-Nr. 205/1996** – “Textures and fabrics in the GRIP ice core, in relation to climate history and ice deformation“, by Thorsteinn Thorsteinsson.
- Heft-Nr. 206/1996** – “Der Ozean als Teil des gekoppelten Klimasystems: Versuch der Rekonstruktion der glazialen Zirkulation mit verschiedenen komplexen Atmosphärenkomponenten“, von Kerstin Fieg.
- Heft-Nr. 207/1996** – “Lebensstrategien dominanter antarktischer Oithonidae (Cyclopoida, Copepoda) und Oncaeiidae (Poecilostomatoida, Copepoda) im Bellingshausenmeer“, von Cornelia Metz.
- Heft-Nr. 208/1996** – “Atmosphäreneinfluß bei der Fernerkundung von Meereis mit passiven Mikrowellenradiometern“, von Christoph Oelke.
- Heft-Nr. 209/1996** – “Klassifikation von Radarsatellitendaten zur Meereisererkennung mit Hilfe von Line-Scanner-Messungen“, von Axel Bochert.
- Heft-Nr. 210/1996** – “Die mit ausgewählten Schwämmen (Hexactinellida und Demospongiae) aus dem Weddellmeer, Antarktis, vergesellschaftete Fauna“, von Kathrin Kunzmann.

- Heft-Nr. 211/1996** – “Russian-German Cooperation: The Expedition TAYMYR 1995 and the Expedition KOLYMA 1995“, by Dima Yu. Bolshiyarov and Hans-W. Hubberten.
- Heft-Nr. 212/1996** – “Surface-sediment composition and sedimentary processes in the central Arctic Ocean and along the Eurasian Continental Margin“, by Ruediger Stein, Gennadij I. Ivanov, Michael A. Levitan, and Kirsten Fahl.
- Heft-Nr. 213/1996** – “Gonadenentwicklung und Eiproduktion dreier *Calanus*-Arten (Copepoda): Freilandbeobachtungen, Histologie und Experimente“, von Barbara Niehoff.
- Heft-Nr. 214/1996** – “Numerische Modellierung der Übergangszone zwischen Eisschild und Eisschelf“, von Christoph Mayer.
- Heft-Nr. 215/1996** – “Arbeiten der AWI-Forschungsstelle Potsdam in Antarktika, 1994/95“, herausgegeben von Ulrich Wand.
- Heft-Nr. 216/1996** – “Rekonstruktion quartärer Klimaänderungen im atlantischen Sektor des Südpolarmeeres anhand von Radiolarien“, von Uta Brathauer.
- Heft-Nr. 217/1996** – “Adaptive Semi-Lagrange-Finite-Elemente-Methode zur Lösung der Flachwassergleichungen: Implementierung und Parallelisierung“, von Jörn Behrens.
- Heft-Nr. 218/1997** – “Radiation and Eddy Flux Experiment 1995 (REFLEX III)“, by Jörg Hartmann, Axel Bochert, Dietmar Freese, Christoph Kottmeier, Dagmar Nagel and Andreas Reuter.
- Heft-Nr. 219/1997** – “Die Expedition ANTARKTIS-XII mit FS ‘Polarstern’ 1995. Bericht vom Fahrtabschnitt ANT-XII/3“, herausgegeben von Wilfried Jokat und Hans Oerter.
- Heft-Nr. 220/1997** – “Ein Beitrag zum Schwerfeld im Bereich des Weddellmeeres, Antarktis. Nutzung von Altimetermessungen des GEOSAT und ERS-1“, von Tilo Schöne.
- Heft-Nr. 221/1997** – “Die Expeditionen ANTARKTIS-XIII/1-2 des Forschungsschiffes ‘Polarstern’ 1995/96“, herausgegeben von Ulrich Bathmann, Mike Lucas und Victor Smetacek.
- Heft-Nr. 222/1997** – “Tectonic Structures and Glaciomarine Sedimentation in the South-Eastern Weddell Sea from Seismic Reflection Data“, by László Oszkó.
- Heft-Nr. 223/1997** – “Bestimmung der Meereisdicke mit seismischen und elektromagnetisch-induktiven Verfahren“, von Christian Haas.
- Heft-Nr. 224/1997** – “Troposphärische Ozonvariationen in Polarregionen“, von Silke Wessel.
- Heft-Nr. 225/1997** – “Biologische und ökologische Untersuchungen zur kryopelagischen Amphipodenfauna des arktischen Meereises“, von Michael Poltermann.
- Heft-Nr. 226/1997** – “Scientific Cruise Report of the Arctic Expedition ARK-XI/1 of RV ‘Polarstern’ in 1995“, edited by Eike Rachor.
- Heft-Nr. 227/1997** – “Der Einfluß kompatibler Substanzen und Kryoprotektoren auf die Enzyme Malatdehydrogenase (MDH) und Glucose-6-phosphat-Dehydrogenase (G6P-DH) aus *Acrosiphonia arcta* (Chlorophyta der Arktis)“, von Katharina Kück.
- Heft-Nr. 228/1997** – “Die Verbreitung epibenthischer Mollusken im chilenischen Beagle-Kanal“, von Katrin Linse.
- Heft-Nr. 229/1997** – “Das Mesozooplankton im Laptevmeer und östlichen Nansen-Becken - Verteilung und Gemeinschaftsstrukturen im Spätsommer“, von Hinrich Hanssen.
- Heft-Nr. 230/1997** – “Modell eines adaptierbaren, rechnergestützten, wissenschaftlichen Arbeitsplatzes am Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung“, von Lutz-Peter Kurdelski.
- Heft-Nr. 231/1997** – “Zur Ökologie arktischer und antarktischer Fische: Aktivität, Sinnesleistungen und Verhalten“, von Christopher Zimmermann.
- Heft-Nr. 232/1997** – “Persistente chlororganische Verbindungen in hochantarktischen Fischen“, von Stephan Zimmermann.
- Heft-Nr. 233/1997** – “Zur Ökologie des Dimethylsulfoniumpropionat (DMSP)-Gehaltes temperierter und polarer Phytoplanktongemeinschaften im Vergleich mit Laborkulturen der Coccolithophoride *Emiliania huxleyi* und der antarktischen Diatomee *Nitzschia lecontei*“, von Doris Meyerdierks.
- Heft-Nr. 234/1997** – “Die Expedition ARCTIC '96 des FS ‘Polarstern’ (ARK XII) mit der Arctic Climate System Study (ACSYS)“, von Ernst Augstein und den Fahrtteilnehmern.
- Heft-Nr. 235/1997** – “Polonium-210 und Blei-210 im Südpolarmeer: Natürliche Tracer für biologische und hydrographische Prozesse im Oberflächenwasser des Antarktischen Zirkumpolarstroms und des Weddellmeeres“, von Jana Friedrich.
- Heft-Nr. 236/1997** – “Determination of atmospheric trace gas amounts and corresponding natural isotopic ratios by means of ground-based FTIR spectroscopy in the high Arctic“, by Arndt Meier.
- Heft-Nr. 237/1997** – “Russian-German Cooperation: The Expedition TAYMYR / SEVERNAYA ZEMLYA 1996“, edited by Martin Melles, Birgit Hagedorn and Dmitri Yu. Bolshiyarov.
- Heft-Nr. 238/1997** – “Life strategy and ecophysiology of Antarctic macroalgae“, by Iván M. Gómez.
- Heft-Nr. 239/1997** – “Die Expedition ANTARKTIS XIII/4-5 des Forschungsschiffes ‘Polarstern’ 1996“, herausgegeben von Eberhard Fahrback und Dieter Gerdes.
- Heft-Nr. 240/1997** – “Untersuchungen zur Chrom-Speziation im Meerwasser, Meereis und Schnee aus ausgewählten Gebieten der Arktis“, von Heide Giese.

- Heft-Nr. 241/1997** – "Late Quaternary glacial history and paleoceanographic reconstructions along the East Greenland continental margin: Evidence from high-resolution records of stable isotopes and ice-rafted debris", by Seung-Il Nam.
- Heft-Nr. 242/1997** – "Thermal, hydrological and geochemical dynamics of the active layer at a continuous site, Taymyr Peninsula, Siberia", by Julia Bolke.
- Heft-Nr. 243/1997** – "Zur Paläoozeanographie hoher Breiten: Stellvertreterdaten aus Foraminiferen", von Andreas Mackensen.
- Heft-Nr. 244/1997** – "The Geophysical Observatory at Neumayer Station, Antarctica. Geomagnetic and seismological observations in 1995 and 1996", by Alfons Eckstaller, Thomas Schmidt, Viola Gaw, Christian Müller and Johannes Røgenhagen.
- Heft-Nr. 245/1997** – "Temperaturbedarf und Biogeographie mariner Makroalgen - Anpassung mariner Makroalgen an tiefe Temperaturen", von Bettina Bischoff-Bäsmann.
- Heft-Nr. 246/1997** – "Ökologische Untersuchungen zur Fauna des arktischen Meereises", von Christine Friedrich.
- Heft-Nr. 247/1997** – "Entstehung und Modifizierung von marinen gelösten organischen Substanzen", von Berit Kirchoff.
- Heft-Nr. 248/1997** – "Laptev Sea System: Expeditions in 1995", edited by Heidemarie Kassens.
- Heft-Nr. 249/1997** – "The Expedition ANTARKTIS XIII/3 (EASIZ I) of RV 'Polarstern' to the eastern Weddell Sea in 1996", edited by Wolf Arntz and Julian Gutt.
- Heft-Nr. 250/1997** – "Vergleichende Untersuchungen zur Ökologie und Biodiversität des Mega-Epibenthos der Arktis und Antarktis", von Andreas Starmans.
- Heft-Nr. 251/1997** – "Zeitliche und räumliche Verteilung von Mineralvergesellschaftungen in spätquartären Sedimenten des Arktischen Ozeans und ihre Nützlichkeit als Klimaindikatoren während der Glazial/Interglazial-Wechsel", von Christoph Vogt.
- Heft-Nr. 252/1997** – "Solitäre Ascidien in der Potter Cove (King George Island, Antarktis). Ihre ökologische Bedeutung und Populationsdynamik", von Stephan Kühne.
- Heft-Nr. 253/1997** – "Distribution and role of microprotozoa in the Southern Ocean", by Christine Klaas.
- Heft-Nr. 254/1997** – "Die spätquartäre Klima- und Umweltgeschichte der Bunger-Oase, Ostantarktis", von Thomas Kulbe.
- Heft-Nr. 255/1997** – "Scientific Cruise Report of the Arctic Expedition ARK-XIII/2 of RV 'Polarstern' in 1997", edited by Ruediger Stein and Kirsten Fahl.
- Heft-Nr. 256/1998** – "Das Radionuklid Tritium im Ozean: Meßverfahren und Verteilung von Tritium im Südatlantik und im Weddellmeer", von Jürgen Sültenfuß.
- Heft-Nr. 257/1998** – "Untersuchungen der Saisonalität von atmosphärischen Dimethylsulfid in der Arktis und Antarktis", von Christoph Kleefeld.
- Heft-Nr. 258/1998** – "Bellinghausen- und Amundsenmeer: Entwicklung eines Sedimentationsmodells", von Frank-Oliver Nitsche.
- Heft-Nr. 259/1998** – "The Expedition ANTARKTIS-XIV/4 of RV 'Polarstern' in 1997", by Dieter K. Fütterer.
- Heft-Nr. 260/1998** – "Die Diatomeen der Laptevsee (Arktischer Ozean): Taxonomie und biogeographische Verbreitung", von Holger Cremer.
- Heft-Nr. 261/1998** – "Die Krustenstruktur und Sedimentdecke des Eurasischen Beckens, Arktischer Ozean: Resultate aus seismischen und gravimetrischen Untersuchungen", von Estella Weigelt.
- Heft-Nr. 262/1998** – "The Expedition ARKTIS-XIII/3 of RV 'Polarstern' in 1997", by Gunther Krause.
- Heft-Nr. 263/1998** – "Thermo-tektonische Entwicklung von Oates Land und der Shackleton Range (Antarktis) basierend auf Spaltspuranalysen", von Thorsten Schäfer.
- Heft-Nr. 264/1998** – "Messungen der stratosphärischen Spurengase ClO, HCl, O₃, N₂O, H₂O und OH mittels flugzeuggetragener Submillimeterwellen-Radiometrie", von Joachim Urban.

* vergriffen / out of print.

** nur noch beim Autor / only from the author.

