

**Untersuchungen zum Beitrag chemischer
und dynamischer Prozesse zur Variabilität des
stratosphärischen Ozons über der Arktis**

**Investigations of contributions by chemical
and dynamical processes to the variability of
stratospheric ozone above the Arctic**

Birgit Heese

**Ber. Polarforsch. 196 (1996)
ISSN 0176 - 5027**

Birgit Heese

University Courses of Svalbard
P.O. Box 156, N-9170 Longyearbyen, Norway

Die vorliegende Arbeit wurde im Juli 1995 dem Fachbereich 2 (Biologie/Chemie)
der Universität Bremen als Dissertation vorgelegt.

Zusammenfassung

Diese Arbeit befaßt sich mit der dynamischen und chemischen Variabilität stratosphärischen Ozons in der Arktis. Dazu wurden an der arktischen Forschungsstation des Alfred-Wegener-Instituts in Ny-Ålesund auf Spitzbergen, der Koldewey-Station, im Winter und Frühjahr 1993/94 Messungen der vertikalen Ozonverteilung mit einem Ozonlidar vorgenommen.

Bei der bereits vorhandenen Lidarapparatur sollte der vertikale Meßbereich in die obere Troposphäre erweitert werden. Zu diesem Zweck wurde der optische Aufbau des Lidar-Detektors neu gestaltet und mit den N_2 -Raman verschobenen Wellenlängen der drei Laserwellenlängen auf sechs Kanäle erweitert. Zudem wurde die Fähigkeit des Lidars, Messungen bei Tageslicht durchzuführen, besser nutzbar gemacht.

Im Winter 1993/94 wurden mit dem Ozonlidar Tageslichtmessungen des Ozonprofils bis Ende April durchgeführt. In einer Fallstudie während der stratosphärischen Frühjahrserwärmung konnte die Entwicklung eines sekundären Ozonmaximums oberhalb der Tropopause im Bereich zwischen 10 und 14 km Höhe in der Nacht auf den 6. April acht Stunden lang mit einer hohen zeitlichen Auflösung von einer Stunde verfolgt werden. Dieses Maximum verlagerte sich in diesem Zeitraum vertikal nach oben und wurde auch in einem Ozonsondenprofil vom nächsten Tag wiedergefunden. Am darauffolgenden Abend war das Maximum weiteren Lidarmessungen zu Folge jedoch nicht mehr vorhanden. Die Ausbildung solcher Strukturen war bisher noch nicht im Detail verstanden. In dieser Arbeit werden hierzu dynamische Ursachen diskutiert. Das Verbleiben des von planetaren Wellen mitgeführten Ozons, die bei ihrer vertikalen Ausbreitung an einer Grenzfläche zum Brechen gezwungen werden, ist die wahrscheinlichste Ursache für die beobachtete Ausbildung sekundärer Ozonmaxima im Bereich des arktischen Polarwirbels.

Im Winter 1994/95 konnten die regelmäßigen Ozonsondenmessungen an der Koldewey-Station aufgrund ihrer in diesem Winter erhöhten zeitlichen Meßdichte (im Rahmen der SESAME-Kampagne) genutzt werden, um den chemisch bedingten Abbau von Ozon innerhalb des arktischen Polarwirbels zu quantifizieren. Der Polarwirbel war in diesem Winter außerordentlich stabil und kalt, so daß ähnliche meteorologische Bedingungen gegeben waren wie in der antarktischen winterlichen Stratosphäre. Die Luftmasse innerhalb des Polarwirbels war relativ gut gegenüber den umgebenden Luftmassen isoliert. Sie kühlte sich im Dezember und Januar auf Temperaturen unterhalb der Koexistenztemperatur von Salpetersäurehydraten ab. Von Mitte Dezember bis Mitte Januar wurden polare Stratosphärenwolken über Ny-Ålesund beobachtet. Damit war die Stratosphäre zu diesem Zeitpunkt bereits für einen chemischen Ozonabbau konditioniert. Sobald die Luftmassen durch Verlagerung des Wirbels und mit fortschreitender Jahreszeit der Sonne ausgesetzt wurden, begann der katalytische Ozonabbau. Die Untersuchungen dieser Arbeit ergaben, daß der Abbau von Ozon in der mittleren Stratosphäre bereits im Januar einsetzte. Im Laufe des Februars verlagerte er sich in die untere Stratosphäre. Die Abbauraten lagen im Januar 1995 im 480 K Niveau bei 0.68 ± 0.11 % pro Tag. Sie erreichten im Februar und März mit 1.25 ± 0.12 % pro Tag im 420 K Niveau maximale Werte. Der Ozonabbau dauerte noch bis Ende März an, länger als jemals in den Jahren zuvor beobachtet wurde. Es wurde abgeschätzt, daß der gesamte Ozonabbau, über den Zeitraum vom Anfang Januar bis Ende März integriert, in

der unteren Stratosphäre bei ca. 60 % lag. Damit war der Verlust an stratosphärischem Ozon im Winter 1994/95 der höchste, der jemals im arktischen Polarwirbel beobachtet wurde.

Summary

This study focuses on the dynamical and chemical variations of stratospheric ozone above the arctic. Measurements of the vertical ozone profile were taken in winter and spring 1993/94 at the Koldewey station in Ny-Ålesund on Spitsbergen which is operated by the Alfred Wegener Institute.

The optical set-up of the Lidar detector was redesigned to expand the vertical measurement range of the Lidar including upper tropospheric measurements. In addition N_2 -Raman shifted wavelengths of the three laser wavelengths were implemented. The daylight measurement capability was improved.

In winter 1993/94 daylight measurements were taken until the end of april. In a case study of the stratospheric final warming observations of the development of a secondary ozone maxima in the vicinity of the tropopause between 10 and 14 km height during eight hours of the night could be used. The time resolution of the ozone profiles was about one hour. The secondary ozone maximum moved upwards and could be observed again in a sonde profile on the next day. Lidar measurements on the next evening did not show this maximum again. The development of such structures was not yet understood in detail. In this study dynamical reasons are discussed. Deposition of ozone transported by planetary waves which are breaking at dynamical boundaries during their vertical propagation, is obviously one reason for the formation of secondary ozone maxima at the edge of the polar vortex.

In Winter 1994/95 the number of regular ozone sonde measurements at the Koldewey station was increased (due to the SESAME campaign) and could be used to determine the chemical ozone depletion inside the Arctic polar vortex. The polar vortex was very stable and cold during this winter so that comparable conditions as in the Antarctic winter stratosphere existed. The air mass inside the polar vortex was isolated against the surrounding air. It cooled down in December and January below the coexistence temperature of nitric acid hydrate. From mid of December until mid of January polar stratospheric clouds were observed above Ny-Ålesund. At this time the stratosphere was preconditioned for chemical ozone depletion. As soon as the air mass was exposed to sunlight due to vortex displacements and increasing sun elevation in spring the catalytic ozone depletion started. This study showed that the ozone depletion in the middle stratosphere already began in mid January. During February the altitude of maximum depletion moved into the lower stratosphere. Depletion rates in January 1995 were 0.68 ± 0.11 % per day at the 480 K surface. Maximum values were reached in February and March with 1.25 ± 0.12 % per day at the 420 K surface. The ozone depletion lasted until the end of March, longer than observed ever before. The total ozone depletion, integrated from January until the end of March was about 60 % in the lower stratosphere. The ozone loss in winter 1994/95 was the highest ever observed inside the Arctic polar vortex.

Danksagung

Ich möchte Herrn Prof. Otto Schrems für die interessante Aufgabenstellung und die Betreuung dieser Arbeit danken.

Herrn Prof. Klaus Künzi danke ich für die Übernahme der Korreferats.

Der Arbeitsgruppe 'Ozon und Aerosol' möchte ich für die gute Zusammenarbeit danken. In erster Linie gebührt mein Dank Peter von der Gathen, der immer ein offenes Ohr für meine Fragen hatte, mir viele seiner gute Ideen verriet und mir nicht zuletzt die von mir ungeliebte Programmierarbeit durch eine nicht endende Anzahl an nutzbaren Subroutinen sehr erleichterte, und sich auch nicht zu schade war, 'kleinere' Programmierarbeiten zu übernehmen, was mir manches Mal aus der Verzweiflung half. Wilfried Ruhe danke ich für die vielen Zeichnungen, die dem Bau des Lidar-Detektors zugrunde lagen, die vielen Korrekturen, die er bei dessen Aufbau durchgeführt hat, und seine gute Laune, die er auch in den stressigsten Phasen behielt. Ingo Beninga danke ich für seine Unterstützung während der ersten sieben Messwochen auf Spitzbergen. Kerstin Stebel danke ich für ihre, zeitweilig unerbittlichen Fragen, die uns in Diskussionen oft auf den richtigen Weg führten. Roland Neuber und Georg Beyerle möchte ich für ihre fachliche Unterstützung danken.

Die mechanischen Bauteile des Lidar-Detektors wurden in der Werkstatt des AWI unter der Leitung von Herrn Erich Dunker erstellt. Ihm möchte ich nicht nur für die zügige Ausführung der Arbeiten danken, wenn ich mal wieder unter Zeitdruck geraten war, sondern auch für seine konstruktiven Vorschläge, die die Fertigstellung des Detektors erst ermöglichten.

Der Kings Bay Kull Company in Ny-Ålesund danke ich für ihre Hilfe und Gastfreundschaft. Allen Menschen, die mir auf Spitzbergen begegnet sind, und die mich auf unterschiedliche Weise unterstützt haben, gilt mein besonderer Dank.

Justus Nothold danke ich für die freundliche Überlassung der FTIR-Messdaten. Folkard Wittrock danke ich für die DOAS-Messdaten. Markus Rex danke ich für die Diskussionen, vor allem die telefonischen kurz vor Beendigung dieser Arbeit.

Sabine Seisel möchte ich für das Korrekturlesen und vielfältige andere Hilfe danken.

Andreas Minikin danke ich für seine Hilfe beim Layout dieser Arbeit, fürs Korrekturlesen und für sein Durchhaltevermögen.

Schließlich möchte ich allen Mitgliedern der Sektion Chemie des AWI in Bremerhaven und allen Mitgliedern der Atmosphärenphysik der Forschungsstelle Potsdam des AWI für ihre Kollegialität und Freundschaft danken.

Diese Arbeit wurde unterstützt durch das Projekt *Stratosphärische Ozonvariationen im Bereich des Polarwirbels (II)* des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF) und durch das Projekt ESMOS/Arctic (European Stratospheric Monitoring Stations in the Arctic) des Environment Program II der Kommission der Europäischen Union.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Stratosphärisches Ozon	4
2.1 Globale Verteilung des Ozons	4
2.2 Stratosphärische Ozonchemie	5
2.2.1 Homogene Gasphasenchemie	6
2.2.2 Polare Stratosphärenwolken	7
2.2.3 Heterogene Chemie	9
3. Dynamik der Atmosphäre	12
3.1 Adiabatische Erhaltungsgrößen	13
3.1.1 Die potentielle Temperatur	13
3.1.2 Die potentielle Vorticity	14
3.2 Der Polarwirbel	15
3.3 Rossby-Wellen	17
4. Grundlagen zum Lidar-Meßverfahren	21
4.1 Die Lidar-Gleichung	21
4.2 Streuprozesse	22
4.2.1 Molekülstreuung	22
4.2.2 Partikel-Streuung	23
4.2.3 Raman-Streuung	24
4.3 Dial-Verfahren zur Bestimmung des Ozonprofils	25
5. Das Ozon-Lidar	29
5.1 Lidar-Detektor	29
5.2 Laserlichtquellen	29
5.3 Aufbau des Lidar-Detektors	30

5.4	Tageslichtmessungen	33
5.5	Lidar-Messungen des Ozonprofils	35
5.5.1	Auswertung der Rückstreusignale	35
5.5.2	Ergebnisse	38
6.	Ozonprofile während der Stratosphärenerwärmung im Frühjahr 1994	40
6.1	Die Entwicklung des Polarwirbels im Winter 1993/94	43
6.2	Beobachtungen der Stratosphärenerwärmung	44
6.2.1	Temperaturprofile	44
6.2.2	Ozonprofile	44
6.2.3	Lidar-Messungen	48
6.2.4	PV-Karten	48
6.2.5	Trajektorien	49
6.3	Strukturen im vertikalen Ozonprofil	52
6.4	Dynamische Effekte und ihr Einfluß auf das Ozonprofil	53
6.4.1	Brechende planetare Wellen	53
6.4.2	Horizontale Ozontransporte durch brechende planetare Wellen	56
6.4.3	Höhenabhängigkeit des Wellenbrechens	57
6.4.4	CAS-Berechnungen	59
7.	Ozonverluste im arktischen Polarwirbel im Winter 1994/95	61
7.1	Die Entwicklung des Polarwirbels im Winter 1994/95	61
7.1.1	Temperaturentwicklung über Ny-Ålesund	62
7.1.2	Lidarmessungen polarer Stratosphärenwolken	65
7.1.3	Ozonmessungen über Ny-Ålesund	67
7.2	Ozonabbau	69
7.2.1	Änderung des Ozonmischungsverhältnisses in festen isentropen Niveaus	70
7.2.2	Einfluß der diabatischen Abkühlung	71
7.2.3	Resultierende Ozonabbauraten	77
7.3	Vergleich mit Ozonabbauraten früherer Jahre	79
7.4	Spurengase und Abbaureaktionen	80
7.5	Schlußfolgerungen	85
8.	Literaturverzeichnis	86

1. Einleitung

Im Jahre 1985 veröffentlichten *Farman et al.* ihre Entdeckung des stratosphärischen Ozonabbaus über dem antarktischen Kontinent. Seit Beginn der 70er Jahre zeigten ihre Messungen an der Station Halley Bay eine zunehmende Reduktion des Ozongehalts der Stratosphäre im antarktischen Frühling. Vor dieser Veröffentlichung wurden Messungen geringer Ozonkonzentrationen über der Antarktis, z. B. die des Total Ozone Mapping Spectrometers (TOMS) auf dem Satelliten Nimbus 7, als fehlerhaft bewertet und vom Auswertalgorithmus verworfen. Das sogenannte Ozonloch wurde deshalb durch Satellitenmessungen nicht gesehen. Seit der Entdeckung *Farman's* wird der Entwicklung der Ozonschicht in der Atmosphärenforschung verstärkte Aufmerksamkeit gewidmet. Die wissenschaftlichen Ergebnisse werden von der Öffentlichkeit mit großem Interesse verfolgt. Dabei ist nicht nur die Ausdehnung und die Stärke des Ozonabbaus in jedem antarktischen Frühling von Interesse, auch die Konsequenzen des antarktischen Ozonabbaus für die Ozonschicht über den bewohnten Gebieten der Erde werden untersucht. In der letzten Dekade hat der Ozongehalt global um ca. 1 % pro Jahr abgenommen (*Stolarski et al., 1991*). Die zunehmende Zerstörung der Ozonschicht, die vor der solaren UV-Strahlung schützt, stellt eine Bedrohung für das Leben auf der Erde dar. Von besonderem Interesse ist in diesem Zusammenhang die Frage, ob ein stratosphärischer Ozonabbau wie über der Antarktis auch über der Arktis in gleichem Ausmaß stattfinden könnte. Inwieweit sich ein derartiger Ozonabbau auf die Reduktion der Ozonschicht in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre auswirken würde, ist zum jetzigen Zeitpunkt noch eine offene Frage.

Die Quantifizierung des Ozonabbaus in der Arktis wird durch eine hohe Variabilität der Zirkulation in der Nordhemisphäre erschwert. Mischungsprozesse von Luftmassen aus mittleren Breiten mit denen der polaren Stratosphäre führen zu Variationen des Ozongehalts, die einen chemischen Ozonabbau maskieren können. Von besonderem Interesse ist die Beobachtung von mittwinterlichen Erwärmungen und der Frühjahrserwärmung der polaren Stratosphäre. Die Variabilität der Ozonprofile erhöht sich zu diesem Zeitpunkt erheblich. Die dafür verantwortlichen physikalischen Prozesse sind jedoch noch nicht im Detail verstanden (*McIntyre und Palmer, 1984*). Einen wesentlichen Beitrag zur stratosphärischen Ozonreduktion können Austauschprozesse mit der Troposphäre liefern (*Ancellet et al., 1994; Ancellet et al., 1991*). Eine detaillierte Untersuchung dieser dynamischen Variationen erfordert kontinuierliche und zeitlich hochaufgelöste Messungen des Ozonprofils in der Stratosphäre und der oberen Troposphäre.

Die Koldewey–Station auf Spitzbergen

Im Jahre 1988 erwarb das Alfred–Wegener–Institut (AWI), Bremerhaven, von der Universität München ein mobiles Ozonlidar. Dieses Lidar arbeitet nach dem Prinzip eines Radars unter Verwendung von Laserlicht und ermöglicht die kontinuierliche Messung der vertikalen Ozonverteilung. Es wurde bereits im Jahre 1987 auf zwei Forschungsreisen mit dem Forschungsschiff FS Polarstern eingesetzt (Steinbrecht, 1988), um u.a. die meridionale Variation des Ozonprofils zu erfassen. Das Alfred–Wegener–Institut setzte dann das Lidar im Winter 1987/88 zunächst in Esrange bei Kiruna, Schweden, für Messungen des vertikalen Ozonprofils ein (Neuber und Krüger, 1990). Im Sommer 1988 wurde es nach Spitzbergen verschifft und in Ny-Ålesund (78.93° N, 11.95° O) aufgestellt.

Seit dem Winter 1988/89 werden in Ny-Ålesund regelmäßig Messungen mit dem Ozonlidar durchgeführt. Im Laufe der Jahre wurde das Meßprogramm des Alfred–Wegener–Instituts erweitert. Neben dem Ozonlidar wurden zunächst auch Ozonsonden gestartet, die das Ozonprofil in situ auf der Basis einer naßchemischen Reaktion des Ozons mit Kaliumjodid messen. Im März 1991 wurde ein Fourier–Transform–Infrarotspektrometer (FTIR) in Betrieb genommen, um neben dem Ozon auch andere für die Ozonchemie wichtige Spurengase vor Ort messen zu können (Notholt et al., 1995). Im August 1991 wurde die erste deutsche Forschungsstation in der Arktis in Ny-Ålesund eingeweiht, die Koldewey–Station, deren Betreiber das Alfred–Wegener–Institut ist. Die Station bietet auch anderen Instituten eine Basis für ihre Forschungen auf Spitzbergen. Je ein Mikrowellenradiometer zur Messung von Ozon und Chlormonoxid der Universität Bremen werden seit dem Winter 1992/93 betrieben. Im Winter 1991/92 wurde das Ozonlidar für Messungen von Aerosolen erweitert. Dazu wurde ein weiterer Laser installiert und ein neuer Mehrwellenlängen-Detektor aufgebaut (Beyerle und Neuber, 1993). Aufgrund ihrer ausgezeichneten instrumentellen Ausstattung wurde die Koldewey–Station 1992 in das internationale Netzwerk für die Erkundung von stratosphärischen Veränderungen ('Network for the Detection of Stratospheric Change', NDSC) integriert. Sie bildet zusammen mit den Stationen Thule auf Grönland und Eureka in Kanada die arktische NDSC–'Primary Station'.

Zielsetzung

Im Rahmen dieser Arbeit sollten dynamisch und chemisch bedingte Variationen des stratosphärischen Ozonprofils in polaren Breiten analysiert werden und das Ausmaß beider Ursachen für die Änderungen des Ozongehalts quantifiziert werden. Das Datenmaterial für diese Analyse sollte mit dem Ozon- und Aerosol–Lidar an der Koldewey–Station gewonnen werden. Dafür war es notwendig, die technischen Möglichkeiten des Lidars zu verbessern. Die Erweiterung des vertikalen Meßbereichs in die obere Troposphäre und die Verlängerung der Meßperiode bis in das Frühjahr hinein standen dabei im Vordergrund. Die Messungen des bisherigen Ozon- und Aerosol–Lidar waren auf den Höhenbereich zwischen 12 km und 50 km in der Stratosphäre und auf die Polarnacht beschränkt. Die Erweiterung des Höhenbereichs sollte Messungen des Ozonprofils gleichzeitig in der oberen Troposphäre und in der Stratosphäre ermöglichen, um die intensiven dynamischen

Variationen des Ozonprofils in diesem Bereich zu erfassen. Die Verlängerung der Meßperiode über die Polarnacht hinaus erlaubt die Beobachtung des Aufbrechens der winterlichen Zirkulation in der polaren Stratosphäre und des damit verbundenen verstärkten dynamischen Transports von Ozon.

Ergänzend zu den Lidar-Messungen konnten die regelmäßigen Ozonsondenaufstiege an der Koldewey-Station für diese Untersuchungen genutzt werden. Im normalen Meßbetrieb wird einmal in der Woche eine Ozonsonde gestartet. Durch die Teilnahme von Wissenschaftlern des Alfred-Wegener-Instituts an europäischen Ozon-Meßkampagnen, wie dem Second European Stratospheric Arctic and Midlatitude Experiment (SESAME), 1993–95, erhöhte sich die Startfrequenz in den Wintermonaten auf mehrere Aufstiege pro Woche. Damit verbesserte sich die zeitliche Auflösung dieser Ozonmessungen erheblich und erlaubte eine kontinuierliche Beobachtung des polaren Ozonprofils.

2. Stratosphärisches Ozon

In diesem Kapitel wird eine kurze Übersicht über die globale Verteilung des stratosphärischen Ozons und über die wichtigsten chemischen Reaktionen gegeben, die für die Bildung und den Abbau des Ozons im photochemischen Gleichgewicht verantwortlich sind. Im Anschluß werden die wichtigsten heterogenen Reaktionen vorgestellt, die zu einer Störung dieses Gleichgewichts führen können und einen massiven Ozonabbau ermöglichen.

2.1 Globale Verteilung des Ozons

Ozon wird in der Atmosphäre durch die Reaktion von einem Sauerstoffmolekül mit einem Sauerstoffatom gebildet. Die dafür notwendigen Sauerstoffatome entstehen durch die Photolyse von molekularem Sauerstoff. Die Produktionsrate von Ozon hängt damit zum einen von der Konzentration des molekularen Sauerstoffs und zum anderen von der Intensität der solaren Einstrahlung ab. Die solare Einstrahlung wiederum ist eine Funktion der solaren Strahlung außerhalb der Erdatmosphäre, des Zenitdistanzwinkels θ der Sonne und der Höhe in der Atmosphäre, in der die Photolyse stattfindet. Die solare Einstrahlung ist am Äquator am höchsten und die maximale Ozonproduktion findet dort in 30 bis 40 km Höhe statt. Das Maximum der vertikalen Ozonverteilung wird dort jedoch in 25 km Höhe beobachtet. An den Polen liegt das Maximum der Produktionsrate in 30 km bis 40 km Höhe ist aber aufgrund des niedrigeren Zenitdistanzwinkels um Größenordnungen geringer. Das Maximum der Ozonkonzentration selbst liegt in tieferen Schichten als am Äquator. Die über die Höhe integrierte Ozonsäule weist an den Polen zudem eine viel höhere saisonale Variabilität auf und ist im Winter nahezu doppelt so hoch wie am Äquator (Abbildung 2.1).

Ein typischer Wert an tropischen Dobson–Stationen ist 250 Dobson Einheiten (DU, Dobson Units). Eine DU ist die Schichtdicke einer reinen Ozonschicht bei Standarddruck und -temperatur, $1 \text{ DU} = 10^{-5} \text{ m Ozon}$. An Stationen in hohen Breiten, wie z.B. Ny–Ålesund, werden in den späten Wintermonaten Ozonsäulendichten um die 400 DU gemessen. Diese Beobachtung kann nur mit einem polwärtigen Transport von Ozon erklärt werden. Die photochemische Lebensdauer des Ozons muß dabei größer sein als die Zeit, die zum Transport vom Äquator zu den Polen benötigt wird. Dieser großräumige Transport erfolgt durch die mittlere Meridionalzirkulation und dauert etwa 3 bis 4 Monate. Die Lebensdauer des Ozons beträgt am Äquator in 15 km Höhe ungefähr 3

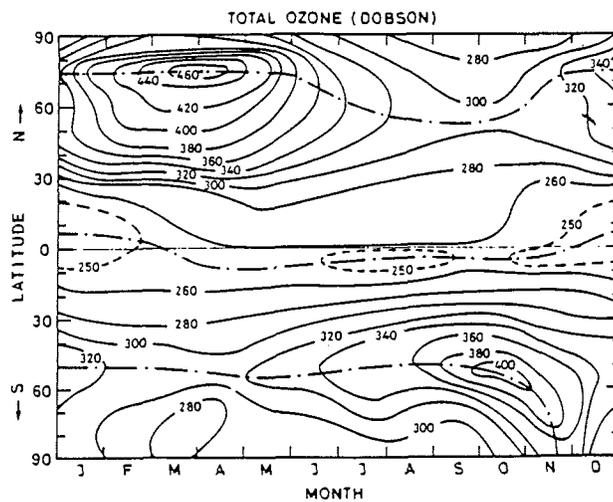


Abbildung 2.1 Geographische und zeitliche Variation der Ozon-Säulendichte. Aus *Brasseur und Solomon* (1986).

Jahre, in 40 km Höhe jedoch nur 2 Tage. Die Grenze der Lebensdauer von 3 bis 4 Monaten liegt in 20 km Höhe. An den Polen liegt sie bei 40 km Höhe. Oberhalb dieser Grenze muß das Ozon primär lokal produziert worden sein. Ein großskaliger Transport des Ozon kann demnach nur in den unteren Schichten der Stratosphäre stattfinden (Wayne, 1991). Zudem wird Ozon sehr effektiv durch planetare Wellen transportiert. Sie vermögen in wesentlich kürzeren Zeitskalen Ozon in der mittleren Stratosphäre vom Äquator zu den Polen zu transportieren (Leovy et al., 1985). Im Winter weisen planetare Wellen aufgrund des größeren meridionalen Temperaturgradienten eine erhöhte Aktivität auf. Außerdem bewirkt die Abkühlung der polaren Stratosphäre zu dieser Jahreszeit ein Absinken der Luftmassen, so daß der Fluß von Ozon polwärts und abwärts gerichtet ist. Somit kann die dann besonders hohe Ozonsäulendichte in diesen Breiten gegen Ende des Winter erklärt werden (Holten, 1979).

2.2 Stratosphärische Ozonchemie

Das erste theoretische Modell zur Beschreibung der Ozonschicht wurde 1930 von *Chapman* entwickelt. Die dabei berücksichtigten photochemischen Reaktionen basieren nur auf atomaren und molekularen Sauerstoff.

2. Stratosphärisches Ozon

Der sogenannte Chapman-Zyklus lautet:

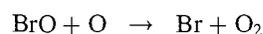
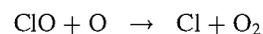
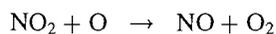
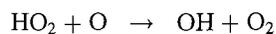


Die Ozonkonzentration ist nach diesem Modell proportional der Wurzel der O_2 -Photolyserate.

Aufgrund der höhenabhängigen O_2 -Photolyseraten der Sauerstoffmoleküle und der Abnahme der Atmosphärendichte mit der Höhe ergibt sich in einem bestimmten Punkt des vertikalen Profils der Ozonkonzentration ein Maximum. Nach dem Chapman-Modell sollte dieses Maximum bei senkrechten Sonnenstand ($\theta = 0$) und einer Wellenlänge von $\lambda = 220 \text{ nm}$ in 35 km Höhe zu finden sein. Als Ozonschicht wird der Höhenbereich maximaler Ozonkonzentrationen bezeichnet. Diese befindet sich in polaren Regionen zwischen 10–20 km in geringeren Höhen als in niederen Breiten. Am Äquator liegt sie im Höhenbereich von 20–30 km.

2.2.1 Homogene Gasphasenchemie

Bis 1964 wurde angenommen, der Chapman-Zyklus reiche zur Beschreibung der atmosphärischen Ozonverteilung aus. Messungen der Geschwindigkeitskonstanten der involvierten Reaktionen zeigten jedoch, daß Ozon fünfmal schneller produziert wird, als es durch die Reaktionen (2.3) und (2.4) des Chapman-Mechanismus abgebaut wird. Der einzig mögliche Prozeß, der einen Ozonabbau in der beobachteten Zeitskala ermöglicht, ist ein katalytischer Zyklus (Bates und Nicolet, 1950). Katalytische Reaktionen des Ozons mit Hydroxyl-Radikalen (OH) stellen eine wichtige, zuvor vernachlässigte Senke für Ozon dar. Ebenso führen Stickstoffmonoxid-, Chlor- und Bromradikale zum Abbau von Ozon:



Die Geschwindigkeitskoeffizienten dieser katalytischen Prozesse sind um Größenordnungen höher als die des Chapman-Zyklus (Tabelle 2.1). Einen Vergleich des beobachteten Ozonprofils

Tabelle 2.1 Reaktionskonstanten für einige katalytischen Ozonabbau-Reaktionen. Aus Wayne (1991). Reaktionskonstanten (k_{220}) für 220 K in $\text{cm}^3\text{Moleküle}^{-1}\text{s}^{-1}$. (A und E_a sind die Arrhenius-Parameter.)

Reaction	X + O ₃			XO + O		
	A	E _a	k ₂₂₀	A	E _a	k ₂₂₀
'O ₂ '			(i.e. reaction O ₃ + O):	8×10^{-12}	17.1	6.8×10^{-16}
H	1.4×10^{-10}	3.9	1.7×10^{-11}	2.3×10^{-11}	~0	2.3×10^{-11}
OH	1.6×10^{-12}	7.8	2.2×10^{-14}	2.2×10^{-11}	-0.1	3.7×10^{-11}
NO	1.8×10^{-12}	11.4	3.5×10^{-15}	9.3×10^{-12}	~0	9.3×10^{-12}
Cl	2.8×10^{-11}	2.1	8.7×10^{-12}	4.7×10^{-11}	0.4	3.7×10^{-11}

mit dem des Chapman-Modells und unter Berücksichtigung der katalytischen Abbaureaktionen zeigt eine recht gute qualitative Übereinstimmung im Falle des reinen Chapman-Modells, jedoch eine viel bessere quantitative Übereinstimmung, wenn die katalytischen Reaktionen berücksichtigt werden.

Der Beitrag dieser katalytischen Reaktionen am Abbau des Ozons ist jedoch auch von der Konzentration der genannten chemischen Verbindungen abhängig. Abbildung 2.2 verdeutlicht, daß NO_x einen Anteil von 70 % am Ozonabbau in 30–40 km Höhe einnimmt, während HO_x in der höheren Stratosphäre dominiert. ClO_x trägt mit bis zu 40 % in 45 km Höhe zum Ozonabbau bei (Wayne, 1991).

2.2.2 Polare Stratosphärenwolken

Modellrechnungen haben gezeigt, daß die oben diskutierten Ozonabbaureaktionen nicht allein zu dem schnellen Ozonabbau im Frühjahr im antarktischen Polarwirbel führen können (WMO, 1986). Messungen von Anderson et al. (1989) im antarktischen Polarwirbel und von Proffitt et al. (1990) im arktischen Polarwirbel zeigen eine Antikorrelation zwischen Ozon und Chlormonoxid. Bei niedrigem Ozongehalt steigt der ClO-Gehalt stark an. Zusätzlich ist die Stratosphäre dann ungewöhnlich trocken und der Gehalt an NO_x-Komponenten ist stark zurückgegangen. Diese sogenannte Dehydratisierung und Denitrifizierung wird durch die Bildung von polaren Stratosphärenwolken ('polar stratospheric clouds', PSC) verursacht. Die Zusammensetzung der PSCs ist noch nicht im Detail verstanden. Als gesichert gilt, daß sie Salpetersäure (HNO₃) enthalten. HNO₃ wird in der Stratosphäre u. a. durch die Reaktion von Stickstoffdioxid (NO₂) mit einem OH-Radikal und einem Stoßpartner gebildet. Diese Wolken werden als PSC vom Typ I bezeichnet. Die wissenschaftliche Diskussion der letzten Jahre kam zu dem Ergebnis, daß die PSCs vom Typ I in der unteren, kalten Stratosphäre durch das Ausfrieren von Salpetersäuretrihydrat

2. Stratosphärisches Ozon

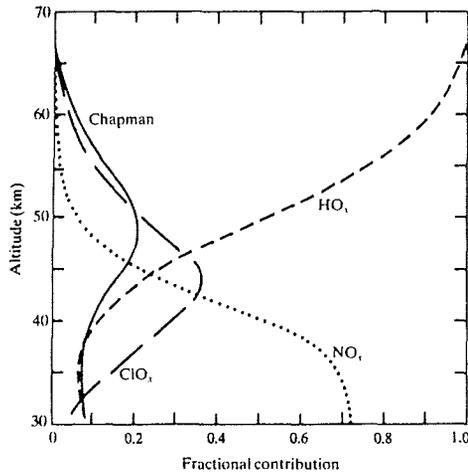


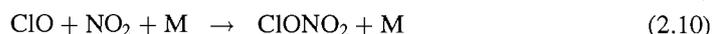
Abbildung 2.2 Relativer Anteil verschiedener Mechanismen (Chapman-Zyklus, HO_x, NO_x und ClO_x) an der Ozon-Abbaurrate. Aus Wayne (1991).

(HNO₃ · 3H₂O, auch als Nitric Acid Trihydrate oder kurz NAT bezeichnet), bei Temperaturen unterhalb von 195 K (Turco et al., 1989) entstehen. Beobachtet wurden PSCs vom Typ I jedoch oft erst, wenn die Temperaturen einige Grade unterhalb der Koexistenztemperatur von NAT in der Stratosphäre liegen (Rosen et al., 1989, Dye et al., 1992, Kawa, 1992). Neue Berechnungen von Toon und Tolbert (1995) zeigen, daß weder NAT noch andere Formen von Salpetersäurehydraten (Mono- oder Dihydrate) in PSCs vom Typ I beobachtet werden. Vielmehr scheinen sie aus einer unterkühlten, ternären Lösung von 5 prozentiger Schwefelsäure und 30 bis 50 prozentiger Salpetersäure zu bestehen. Zu dem gleichen Ergebnis führten die Untersuchungen von Drdla et al. (1994) aufgrund von Messungen der Aerosolgrößenverteilung und von NO_y (darunter ist die Summe der Konzentrationen von HNO₃, NO, NO₂ und N₂O₅ zu verstehen) während eines Fluges im Rahmen der Kampagne AASE 1 im Januar 1989. Die Menge an kondensierter Salpetersäure stimmt nicht mit dem Aerosolvolumen der PSCs überein, wenn diese aus festem NAT bestehen würden. Daher kann auf ein Auftreten von Schwefelsäure und Salpetersäure in flüssiger Form geschlossen werden.

Bei noch tieferen Temperaturen unterhalb von 187 K friert Wasser aus und es können PSCs vom Typ II entstehen, (Crutzen und Arnold, 1986). PSC Typ I besteht aus kleinen Teilchen in der Größenordnung von 1 µm und PSC Typ II aus größeren Eisteilchen von 10 µm Durchmesser. Aufgrund ihrer Größe vermögen Typ II PSC-Partikel langsam zu sedimentieren. Da auch sie Salpetersäure enthalten, wird bei diesem Prozess NO_x aus der Stratosphäre entfernt (Hanson, 1992).

2.2.3 Heterogene Chemie

An den Oberflächen der PSC-Partikel können heterogene Reaktionen ablaufen, bei denen Moleküle in verschiedenen Aggregatzuständen miteinander reagieren. In diesem Falle liegen die Reaktionspartner in der Gasphase und in fester bzw. flüssiger Form vor. Heterogene Reaktionen an den Oberflächen der PSC-Partikel führen zu einer Aktivierung von Substanzen, die vorher in nichtreaktiven Reservoirverbindungen vorlagen. Dazu zählen Chlorverbindungen. Chlorverbindungen werden seit einigen Jahrzehnten vorwiegend über anthropogen erzeugte Stoffe in die Stratosphäre eingetragen. Der Hauptanteil wird in Form von Fluorchlorkohlenwasserstoffen produziert, hauptsächlich CFCl_3 und CF_2Cl_2 . FCKWs sind in der Troposphäre sehr stabil und können über sehr weite Entfernungen von der Nordhemisphäre, dem Hauptemissionsgebiet, in die antarktische Stratosphäre transportiert werden. Gemessen wurde ein Gesamtchlorgehalt von 2.7 ± 0.9 bis 3.2 ± 0.7 ppbv in 20 km Höhe (Berg et al., 1980). In der Stratosphäre können von den FCKWs photolytisch Chlornitradikale abgespalten werden, die dann direkt Ozon abbauen können oder in Reservoirsubstanzen umgewandelt werden. Die wichtigsten Reservoirstoffe für Chlor sind Salzsäure (HCl) und Chlornitrat (ClONO_2). Sie entstehen durch die Reaktion von Chlornitradikalen mit Methan und von Chlormonoxid mit Stickstoffdioxid:

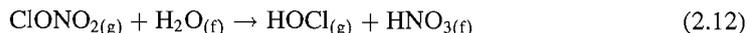


Bei Anwesenheit von PSCs wird das Gleichgewicht der homogenen Gasphase zwischen aktivem Chlor und Reservoir-Chlor gestört. Die Reservoirsubstanzen reagieren an den PSC-Oberflächen und setzen Chlor frei (Solomon et al., 1986):



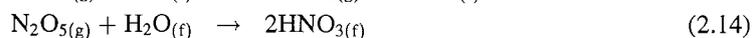
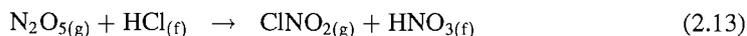
Die Indizes (g) und (f) stehen für gasförmig und fest, bzw. flüssig. HNO_3 verbleibt in den PSCs und steht nicht mehr für eine Bildung von Reservoirverbindungen zur Verfügung. Bei Sonnenaufgang im polaren Frühling wird Chlor photolytisch gespalten und die entstehenden Chlornitradikale reagieren mit Ozon.

Bei der Reaktion von Chlornitrat auf Eisoberflächen (Prather, 1992)



bildet sich Hypochlorige Säure (HOCl), die zu ClO_x -Radikalen photolysiert werden kann.

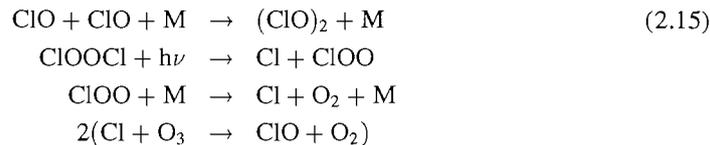
Eine weitere wichtige Reservoirsubstanz ist Distickstoffpentoxid N_2O_5 . 90 % der Stickoxide NO_2 und NO_3 in der Stratosphäre werden während der Polarnacht zu N_2O_5 umgewandelt. Heterogene Reaktionen des N_2O_5 , die in der Polarnacht in der Stratosphäre ablaufen könnten, konnten im Labor an synthetischen PSC-Oberflächen nachgewiesen werden. Bisher sind folgende Reaktionen dieser Reservoirsubstanz bekannt (Prather, 1992):



2. Stratosphärisches Ozon

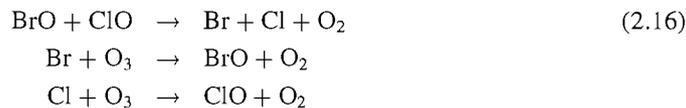
Nitrylchlorid photolysiert im nahen UV und im Sichtbaren leicht zu ClO_x -Radikalen. Die Salpetersäure verbleibt in den PSCs. Dieser Vorgang entfernt NO_x aus der Gasphase der Stratosphäre. Er könnte mit 'Denitrifizierung' bezeichnet werden. Im Unterschied zur Denitrifizierung verbleibt die Salpetersäure in der Stratosphäre, solange die PSCs nicht sedimentieren.

Ein einziges Chlorradikal kann durch den wiederholten Ablauf von Reaktion (2.7) in der Größenordnung 10^4 Ozonmoleküle zerstören, bevor es wieder in einer Reservoirsubstanz gebunden wird. Jedoch ist, gerade bei wiederkehrender Sonne im Frühjahr, viel zu wenig atomarer Sauerstoff in der unteren Stratosphäre vorhanden, um den beobachteten Ozonabbau nur durch den Mechanismus nach Gleichung (2.7) zu erklären. Es muß demnach im Höhenbereich der PSCs ein weiterer katalytischer Zyklus von Bedeutung sein. Er wurde von *Molina* und *Molina* (1987) vorgeschlagen und beginnt mit einem Chlormonoxid-Dimer und produziert zwei Chlorradikale.



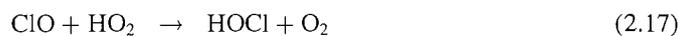
In diesem Zyklus werden zwei Ozonmoleküle abgebaut.

Eine ClOOC -Bildung kann nur bei tiefen Temperaturen stattfinden und wird durch eine hohe Konzentration von ClO -Radikalen begünstigt. Außerdem muß die Konzentration von NO gering sein, sonst reagiert ClO sofort mit NO zu NO_2 . Diese Voraussetzungen sind im Winter der unteren Stratosphäre gegeben. Dieser Zyklus kann somit erheblich zur Ozonzerstörung im antarktischen Frühling beitragen. Auch biogene und anthropogene Bromverbindungen werden in die Stratosphäre eingetragen. Ein katalytischer Zyklus, der signifikant zum Ozonverlust beitragen kann, wenn Brom in einem Mischungsverhältnis von $15\text{--}30 \cdot 10^{12}$ Moleküle cm^{-3} vorliegt, wird durch das folgende Reaktionsschema beschrieben (*McElroy et al., 1986*):



In der unteren Stratosphäre beträgt das Mischungsverhältnis von Brom jedoch nur $5\text{--}10 \cdot 10^{12}$ Moleküle cm^{-3} . Man schätzt deshalb, daß dieser Zyklus einem Anteil von bis zu ca. 20 % am Ozonabbau hat.

Wenn Denitrifizierung einsetzt, erhöht sich die Konzentration von HO_x -Radikalen und ein weiterer katalytischer Abbaumechanismus wird ermöglicht:



2.2 Stratosphärische Ozonchemie

Der Beitrag zum Ozonabbau ist jedoch wesentlich geringer als durch die zuvor angegebenen Zyklen (Wayne, 1991).

Modelle, die die Gasphasenreaktionen einer durch die genannten heterogenen Reaktionen konditionierten Stratosphäre beschreiben, können den beobachteten Ozonabbau relativ gut wiedergeben.

3. Dynamik der Atmosphäre

In diesem Kapitel sollen einige Aspekte der Dynamik der Atmosphäre dargestellt werden, die in direktem Bezug zu stratosphärischem Ozon stehen. Bei diesem umfangreichen Thema kann im Rahmen dieser Arbeit kein Anspruch auf Vollständigkeit erhoben werden. Deshalb sei an dieser Stelle auf die umfassenden Darstellungen von *Andrews et al.* (1987) und *Dutton* (1986) hingewiesen.

Die größten Unterschiede meteorologischer Größen der Atmosphäre sind entlang der Vertikalen zu finden. Druck und Dichte nehmen in den ersten 100 km alle 16 km um eine Größenordnung ab und die Temperatur verringert sich bis ungefähr 10 km Höhe auf -60° bis -70°C . Die Windgeschwindigkeit kann vom Boden bis zum Strahlstrom in 10 km Höhe von 0 auf 100 m s^{-1} zunehmen. Derart starke Variationen werden, außer in einigen Wirbelstürmen, niemals in der Horizontalen beobachtet (*Dutton, 1986*). Die Atmosphäre läßt sich dem entsprechend vertikal in unterschiedliche Schichten einteilen (Abbildung 3.1). In der untersten Schicht, der Troposphäre, spielt sich das Wettergeschehen ab. Sie zeichnet sich durch einen negativen vertikalen Temperaturgradienten aus. An der Obergrenze der Troposphäre kehrt sich der vertikale Temperaturgradient um. Dieses Niveau wird Tropopause genannt. Sie liegt am Äquator, bedingt durch die aufsteigende Zirkulation der Hadleyzelle in 14–16 km Höhe. In den mittleren Breiten liegt sie im Bereich von 10 km Höhe und nimmt zu polaren Breiten hin auf ungefähr 8 km ab, wobei es im Bereich des Polarstrahlstroms zu einer Diskontinuität in der Tropopausenhöhe kommt. Die Umkehr des vertikalen Temperaturgradienten ist nur ein Kriterium für die Lage der Tropopause, die sogenannte thermische Tropopause. Ein anderes Merkmal für die Grenze zwischen der Troposphäre und der Stratosphäre ist der maximale Gradient der potentiellen Vorticity. Auf die Notwendigkeit dieser Definition der Tropopause wird im Kapitel 3.1.2 näher eingegangen. Oberhalb der Tropopause liegt die Stratosphäre, ein sehr stabil geschichteter Abschnitt der Atmosphäre. Die Temperatur nimmt darin aufgrund der Absorption solarer Strahlung durch Ozon mit der Höhe zu. Oberhalb von 50 km Höhe schließt sich die Mesosphäre an. Der Temperaturgradient ist wieder negativ, und in ungefähr 80 km Höhe wird im Sommer über der Arktis das absolute Temperaturminimum in der Atmosphäre beobachtet. Dieser Bereich wird als Mesopause bezeichnet. Darüber nimmt die Temperatur bis zum extraterrestrischen Raum wieder zu. Diese äußerste Schicht wird Thermosphäre genannt.

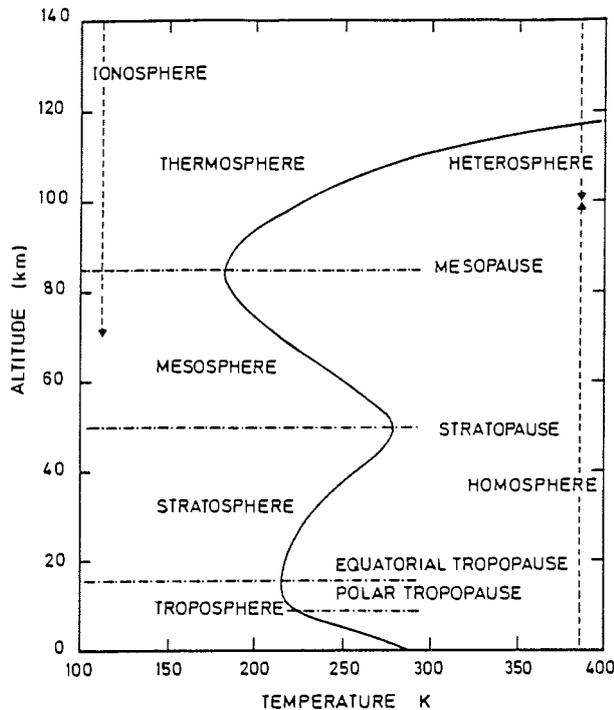


Abbildung 3.1 Vertikaler Aufbau der Atmosphäre. Aus *Brasseur und Solomon* (1986).

3.1 Adiabatische Erhaltungsgrößen

3.1.1 Die potentielle Temperatur

Die potentielle Temperatur θ ist diejenige Temperatur, die ein Luftpaket annimmt, wenn es unter adiabatischen Bedingungen auf einen Druck von 1000 hPa gebracht wird.

$$\theta = T \left(\frac{1000}{p} \right)^{\frac{R}{c_p}} \quad (3.1)$$

Dabei ist T die Temperatur des Luftpaketes, p der Luftdruck, c_p die spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck und $R = 8.31441 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ die universelle Gaskonstante (*Holten, 1979*). Bei der Betrachtung von adiabatischen Bewegungen ist es sinnvoll, die potentielle Temperatur als vertikale Koordinate zu wählen, da diese dabei eine Erhaltungsgröße ist.

3.1.2 Die potentielle Vorticity

Die Wirbelstärke oder Vorticity der Atmosphäre ist die vertikale Komponente der Rotation des Geschwindigkeitsfeldes. In der dynamischen Meteorologie spielen die horizontalen Komponenten der Rotation eine untergeordnete Rolle, da die vertikale Ausdehnung der Atmosphäre klein gegenüber der horizontalen ist. Es wird demnach nur die vertikale Komponente betrachtet, dabei jedoch zwischen der absoluten Vorticity η und der relativen Vorticity ζ unterschieden.

$$\eta = \vec{k} \cdot \nabla \times \vec{v}_a \quad \zeta = \vec{k} \cdot \nabla \times \vec{v} \quad (3.2)$$

Hierbei ist \vec{k} der Einheitsvektor in vertikaler Richtung. Der Nabla-Operator

$$\nabla = \left(\left(\frac{\partial}{\partial x} \right), \left(\frac{\partial}{\partial y} \right), \left(\frac{\partial}{\partial z} \right) \right)$$

repräsentiert die räumliche Ableitung und \vec{v}_a und \vec{v} stehen für den absoluten und relativen Windvektor. *Relativ* bedeutet in diesem Fall relativ zur Erde, die hierfür ein feststehendes Bezugssystem darstellt. Der absolute Windvektor bezieht die Rotationsgeschwindigkeit $\vec{v}_e = \vec{\Omega} \times \vec{r}$ der Erde mit ein.

$$\vec{v}_a = \vec{v} + \vec{\Omega} \times \vec{r}.$$

$\vec{\Omega}$ ist die Winkelgeschwindigkeit der Erde und \vec{r} der Ortsvektor.

Entsprechend ist der Zusammenhang zwischen der absoluten und der relativen Vorticity durch die planetare Vorticity, die auf der Erddrehung beruht, gegeben. Die vertikale Komponente der planetaren Vorticity ist gleich dem Coriolisparameter f .

$$f = \vec{k} \cdot \nabla \times \vec{v}_e = 2\Omega \sin \varphi \quad (3.3)$$

$$\eta = \zeta + f \quad (3.4)$$

wobei φ die geographische Breite ist.

Die potentielle Vorticity (PV) ergibt sich aus der absoluten Vorticity durch Hinzufügen eines Stabilitätsterms:

$$\text{PV} = -g(\zeta + f) \frac{\partial \theta}{\partial p} \quad (3.5)$$

wobei der Term $\frac{\partial \theta}{\partial p}$ die statische Stabilität beschreibt (Pichler, 1986). Die potentielle Vorticity ist somit ein Maß für die Stabilität und die Wirbelstärke der Atmosphäre. Da $\frac{\partial \theta}{\partial p}$ bei adiabatischen Prozessen verschwindet, ist auch die potentielle Vorticity eine Erhaltungsgröße. Die Einheit, in der die potentielle Vorticity dargestellt wird, sind $10^{-6} \text{K m}^2 \text{kg s}^{-1}$ (PVU) (Hoskins et al., 1985). Die potentielle Vorticity nimmt in der stabileren Stratosphäre schneller mit der Höhe zu, als in der Troposphäre. Die Änderung des Gradienten der potentiellen Vorticity ist somit ein dynamisches Merkmal der Tropopause. Diese dynamische Grenze zwischen Troposphäre und Stratosphäre separiert viel realistischer Luftmassen mit unterschiedlichen dynamischen Eigenschaften als es

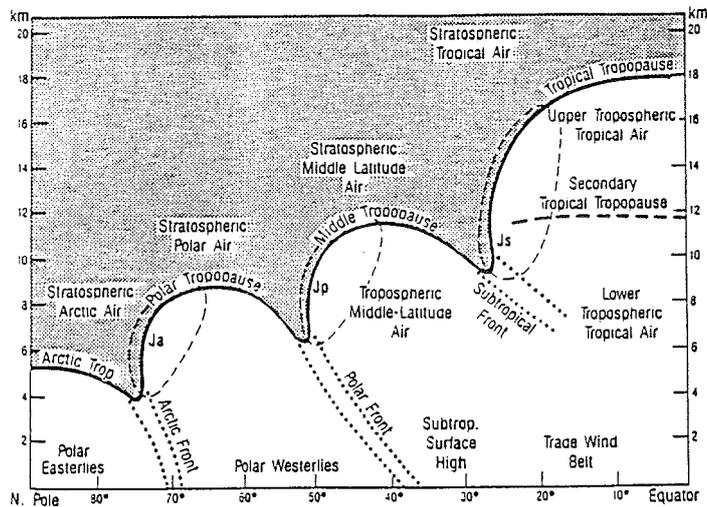


Abbildung 3.2 Die Struktur der Tropopause. Aus Shapiro et al. (1986).

das Kriterium des vertikalen Temperaturgradienten vermag. Die Analyse von meteorologischen Daten nach dem Temperaturgradienten produziert z.B. in der Nähe der Strahlströme einen Sprung in der Tropopause oder mehrere übereinanderliegende Tropopausen (Abbildung 3.2). Der Gradient der potentiellen Vorticity hingegen zeigt, daß die Tropopause in diesem Bereich senkrecht verlaufen kann (Danielsen, 1968). Eine derart gestaltete Tropopause wird auch bei einer Tropopausenfaltung beobachtet.

Da die potentielle Vorticity mit der Zyklonalität von Wirbelfeldern zunimmt, verdeutlicht ihre räumliche Verteilung in einem isentropen Niveau die Lage und Ausdehnung von Tiefdruckwirbeln, wie z.B. dem Polarwirbel.

3.2 Der Polarwirbel

Im Winter bildet sich über den Polkappen in der Stratosphäre ein Tiefdruckwirbel, der sogenannte Polarwirbel, aus. Die Luftmassen innerhalb des Polarwirbels sind relativ gut gegenüber die umgebenden Luftmassen isoliert. Er entsteht durch die Abkühlung der Stratosphäre infolge der geringeren und schließlich ausbleibenden solaren Einstrahlung. Der fehlende Energieeintrag führt zu einer Temperaturabnahme einhergehend mit einer Dichteerhöhung und damit zu einem Absinken und einer Druckabnahme in diesen Schichten. Aus Kontinuitätsgründen kommt es zu einem Nachströmen von Luftmassen aus niederen Breiten, die unter dem Einfluß der Corioliskraft

3. Dynamik der Atmosphäre

nach rechts (auf der Nordhemisphäre nach Osten) abgelenkt werden.

Diesen Prozeß beschreibt die Gleichung für den thermischen Wind:

$$\frac{\partial \vec{v}_g}{\partial z} = \frac{-g}{fT} \vec{k} \times \nabla_H T \quad (3.6)$$

bzw.

$$\frac{\partial u_g}{\partial z} = \frac{-g}{fT} \frac{\partial T}{\partial y} \quad \frac{\partial v_g}{\partial z} = \frac{g}{fT} \frac{\partial T}{\partial x}$$

Dabei ist $\vec{v}_g = (u_g, v_g)$ der geostrophische Wind mit seiner zonalen und meridionalen Komponente u_g und v_g . Der geostrophische Wind ist eine Approximation des realen Windes. Dabei wird der Einfluß der Reibung und der Schwerkraft vernachlässigt. Er beschreibt die horizontale Komponente des Windvektors, wobei sich die beiden wichtigsten Kräfte in der Atmosphäre, die Druckgradientkraft und die Corioliskraft die Waage halten. Diese Approximation ist gültig, wenn großräumige Bewegungen in mittleren Breiten in der freien Atmosphäre oberhalb der Reibungsschicht betrachtet werden (*Holten, 1979*).

Das mit dem beginnenden Winter entstehende Temperaturminimum über dem Pol verursacht einen negativen meridionalen Temperaturgradienten. Die Gleichung für den thermischen Wind liefert dann einen nach Osten gerichteten, geostrophischen Wind, dessen Betrag nach Gleichung (3.6) mit der Höhe zunimmt und den sogenannten Polarnacht-Jet in der oberen Stratosphäre hervorruft (*Holten, 1979*), siehe Abbildung 3.3. Dieses Starkwindband bildet den Polarwirbel.

Der Polarwirbel zeichnet sich durch ein Maximum an potentieller Vorticity gegenüber den umgebenden Luftmassen aus (Abbildung 3.4). Die genaue Bestimmung des Wirbelrandes, also die Grenze zwischen Polarwirbel und umgebender Luftmasse gestaltet sich erfahrungsgemäß schwierig. Prinzipiell definiert der größte Gradient der potentiellen Vorticity den Wirbelrand. Dieser Gradient kann sich jedoch über ein großes Gebiet erstrecken. Deshalb hat sich in den letzten Jahren eine Unterteilung in den Kernbereich des Wirbels und einen Wirbelrandbereich durchgesetzt. Typische Werte der potentiellen Vorticity am Wirbelrand in einzelnen isentropen Niveaus sind 4 PVU in 350 K, 21 PVU in 425 K, 36 PVU in 475 K und 70 PVU in 550 K (*Knudsen, 1992a*). Der Kernbereich des Wirbels zeichnet sich in 475 K durch Werte größer als 42 PVU aus. Diese Angaben sollten als Orientierungshilfen für eine schnelle Analyse der PV-Karten betrachtet werden. Die täglichen Variationen des maximalen PV-Gradienten können erheblich sein. Zusätzliche Variationen werden von Jahr zu Jahr beobachtet. Die Größenordnung dieser Unterschiede macht eine Studie von *Rummukainen et al. (1994)* deutlich. Darin wird der PV-Gradient mit der maximalen Windgeschwindigkeit, einem weiteren Kennzeichen des Wirbelrandes, verglichen. In den beiden untersuchten Winterperioden lagen die mittleren Werte der potentiellen Vorticity für Januar bis März 1992 bei 31 ± 2 PVU und im gleichen Zeitraum 1993 bei 34 ± 2 PVU im 475 K Niveau. Im 550 K Niveau fanden sie den stärksten PV-Gradienten bei 67 ± 5 PVU (1992) und 74 ± 6 PVU (1993). Die täglichen Variationen in den beiden Niveaus lagen bei 4.7 PVU bzw. 11.4 PVU in 1992 und 5.4 PVU bzw. 12.7 PVU in 1993. Die Unterschiede zwischen den beiden Jahren sind in der Intensität des Wirbels zu suchen. Er war 1992 schwächer und instabiler als 1993.

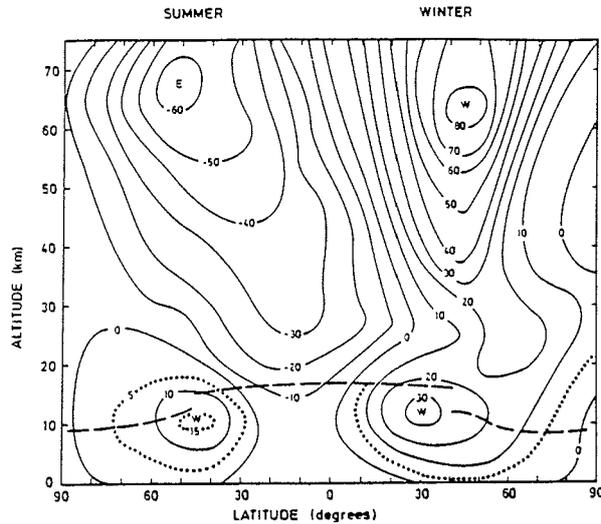


Abbildung 3.3 Meridionale Verteilung des zonalen Windes. Aus *Brasseur und Solomon* (1986).

Ein auf allen Niveaus vergleichbarer Wert der potentiellen Vorticity wird durch eine Skalierung mit einem dem jeweiligen Niveau entsprechenden Stabilitätsterm aus einer Standardatmosphäre gewonnen (*Dunkerton und Delisi, 1986; McIntyre und Palmer, 1984*).

$$\overline{PV} = \frac{PV}{\frac{\partial \theta_0}{\partial p}} \quad (3.7)$$

Manney und Zurek (1993) geben für diese normierte potentielle Vorticity den Wert 1.9 s^{-1} am Wirbelrand an.

3.3 Rossby-Wellen

Planare Wellen spielen beim Transport von Ozon in die Polargebiete eine bedeutende Rolle. Es handelt sich hierbei um großräumige Wellen, die in den mittleren und subpolaren Breiten oberhalb der Grenzschicht auftreten. Sie entstehen durch den meridionalen Gradienten planetarer Vorticity, also die Änderung des Coriolisparameters mit der geographischen Breite, dem sogenannten β -Effekt:

$$\beta = \frac{\partial f}{\partial y} \quad (3.8)$$

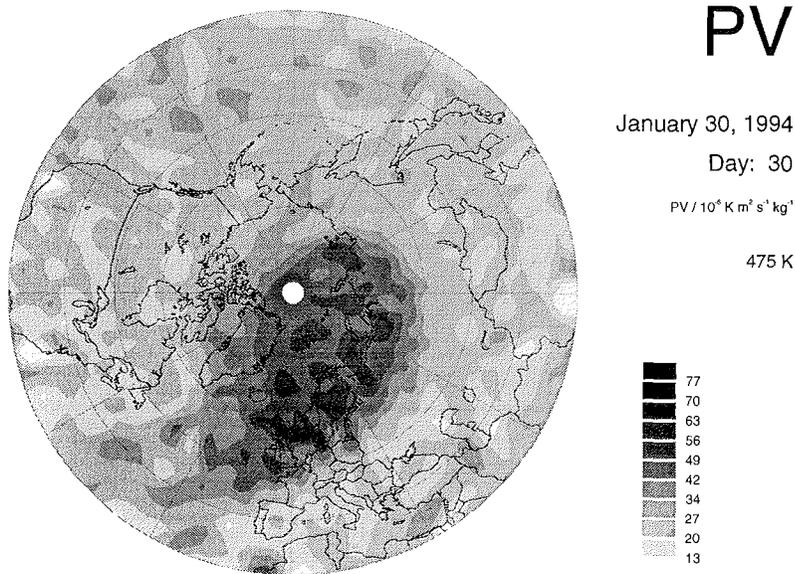


Abbildung 3.4 Die potentielle Vorticity im 475 K Niveau.

In einer barotropen, nicht-divergenten, reibungsfreien Atmosphäre bleibt die absolute Vorticity η erhalten: $\eta = \zeta + f = \text{const.}$ Da der Coriolis-Parameter f vom Äquator zu den Polen hin zunimmt, muß sich die relative Vorticity ζ eines Luftpaketes ändern. Sie wird z. B. in einer nordwestlichen Strömung geringer. Die Strömung selbst wird somit in Richtung Osten und schließlich nach Süden abgelenkt. Bei südöstlichem Verlauf der Strömung nimmt f jedoch wieder ab, so daß die relative Vorticity zunimmt und die Strömung wieder in Richtung Nordosten gelenkt wird. Dadurch entsteht eine wellenförmige Bewegung der Luftmassen. Eine Störung der zonalen Strömung erfolgt an topographischen Hindernissen wie Bergketten. So bedingen z. B. die Rocky Mountains eine vermehrtes Auftreten von Rossby-Wellen in der Nordhemisphäre.

Die Ausbreitungsgeschwindigkeit c von planetaren Wellen ist eine Funktion des zonalen Grundstromes U und der Wellenlänge L .

$$c = U - \frac{\beta L^2}{4\pi^2} \quad (3.9)$$

Sehr lange Wellen mit Wellenzahlen von 1 oder 2 sind stationär oder bewegen sich sogar retrograd, d.h. von Ost nach West. In der mittleren Troposphäre werden vier bis acht Wellenzüge beobachtet. Diese relativ kurzen Wellen bewegen sich ostwärts, sind jedoch langsamer als der Grundstrom: $c < U$. Wellen mit einer zonalen Wellenlänge von 6000 km haben eine Geschwindigkeit von ca. -6 m s^{-1} relativ zum Grundstrom (Holten, 1979). Diese planetaren Wellen wurden erstmals 1939 von C.-G. Rossby beschrieben. Ihre Entdeckung bedeutete einen großen Fortschritt in

der Vorhersage der Luftströmungen in der mittleren und oberen Troposphäre und damit der Vorhersage der Bewegung der Zyklonen und Antizyklonen, die sich an den planetaren Wellen entlang bewegen (*Platzman, 1968*).

Die vertikale Struktur der Rossby-Wellen ist von ihrer horizontalen Wellenlänge und vom mittleren zonalen Wind abhängig. Eine vertikale Zunahme des Windes führt bei stationären Rossby-Wellen ($c = 0$) nach Gleichung 3.9 zu einer Zunahme der Wellenlänge.

$$L = 2\pi\sqrt{\frac{U}{\beta}} \quad (3.10)$$

Die lineare Wellentheorie liefert für eine stationäre Welle mit positiver vertikaler Wellenzahl, eine sich nach oben ausbreitende Welle, bei einer meridionalen Wellenlänge von 10 000 km in 60° Breite eine maximale zonale Geschwindigkeit von $110/(s^2 + 3)$ m s⁻¹. Dabei ist s die sphärische zonale Wellenzahl. Das bedeutet, daß sich eine Welle der Wellenzahl $s = 1$ nur in westlichen Winden mit Geschwindigkeiten kleiner 28 m s⁻¹ ausbreiten kann. Eine Welle der Wellenzahl $s = 2$ existiert nur bei einer Geschwindigkeit kleiner 16 m s⁻¹ (*Andrews et al., 1987*).

Rossby-Wellen in synoptischen Größenordnungen sind aufgrund der geringeren zonalen Windgeschwindigkeiten hauptsächlich in der Troposphäre zu beobachten. In der unteren Stratosphäre nimmt ihre Amplitude sehr schnell ab. Rossby-Wellen planetarer Größenordnung (1 bis 2 Wellenzüge) breiten sich vertikal aus, wenn ihre Phasengeschwindigkeit relativ zum Grundstrom westwärts gerichtet ist. Wellen dieser Größenordnung sind relativ zur Erdoberfläche stationär. Westwinde werden in der polaren Stratosphäre nur im Winter beobachtet, im Sommer sind Ostwinde vorherrschend. Deshalb können sich planetare Wellen im Sommer nicht höher als bis in die untere Stratosphäre ausbreiten (Abbildung 3.5) (*Andrews et al., 1987*). In der winterlichen Stratosphäre werden planetare Wellen mit Wellenzahlen von 1 oder 2, maximal 3 beobachtet. Das Zirkulationsmuster kann stark variieren. In einigen Wintern dominiert die Wellenzahl 2 und in anderen Wintern die Wellenzahl 1 (*Matsuno, 1970*).

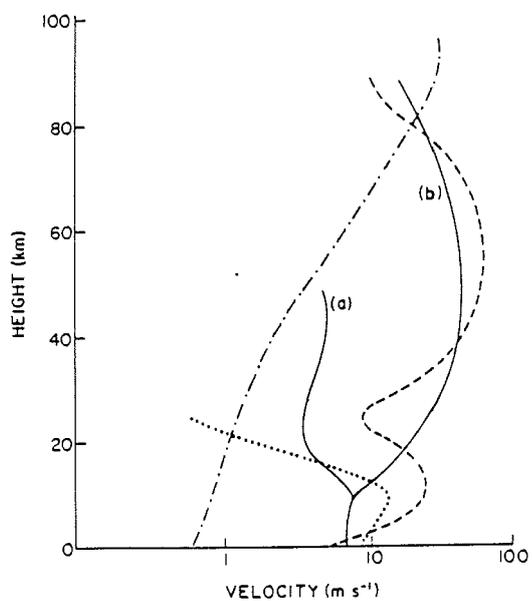


Abbildung 3.5 Vertikale Profile der Amplituden des horizontalen Windes. Durchgezogene Kurve: planetare Wellen (a) im Sommer, (b) im Winter; gestrichelt: zonales Mittel; gepunktet: synoptische Wellen; strichpunktiert: Schwerewellen. Nach *Matsuno* aus *Andrews et al.* (1987).

4. Grundlagen zum Lidar-Meßverfahren

Lidar steht für 'light detection and ranging'. Es wird auch als optisches Radar bezeichnet. Bei dieser Fernerkundungsmethode werden anstelle der Radiowellen Laserpulse in die Atmosphäre gesandt. Das von den Molekülen und Spurenstoffen der Atmosphäre zurückgestreute Licht wird mit einem Teleskop aufgefangen und der zeitliche Verlauf der Intensität in einem geeigneten Detektor analysiert. Das gemessene Intensitätsprofil erlaubt Rückschlüsse über den Zustand und die Zusammensetzung der Atmosphäre. Die Wahl der verwendeten Laserwellenlängen hängt von der Problemstellung ab. So wird z. B. der Ozongehalt über die Absorption von ultraviolettem Licht gemessen. Die zeitliche Auflösung der Profile richtet sich neben der Stärke der Laserlichtquelle und der Güte der optischen Komponenten nach der Höhe, aus der die Anzahl der zurückgestreuten Photonen für die Auswertung ausreicht. Profile aus der unteren und mittleren Stratosphäre können mit dem in Ny-Ålesund betriebenen Lidar aus einer Messung über 1 bis 2 Stunden erstellt werden. Für Profile, die bis in 50 km Höhe reichen, muß das Rückstreusignal über 6 bis 8 Stunden integriert werden.

4.1 Die Lidar-Gleichung

Entfernungsbestimmung

Aus der Messung der Zeitdifferenz Δt zwischen einem ausgesandten Laserpuls und dem empfangenen Signal wird die Entfernung z bestimmt, in der sich das rückstreuende Teilchen befindet.

$$z = \frac{c \Delta t}{2} \quad (4.1)$$

c bezeichnet die Lichtgeschwindigkeit.

Der Laserpuls wird senkrecht in die Atmosphäre emittiert, so daß Höhenprofile erstellt werden können. Die Höhenauflösung Δz wird prinzipiell durch die Pulslänge τ des Lasers begrenzt, in der Praxis ist letztere jedoch klein gegenüber der Breite eines Höhenkanals.

Lidar-Gleichung

Die am Detektor empfangene Intensität wird durch die Lidar-Gleichung beschrieben:

$$P(z, \lambda) = P_0(\lambda) \frac{A}{z^2} \Delta z O(z, \lambda) \eta(\lambda) \beta(z, \lambda) T^2(z, \lambda) \quad (4.2)$$

Die Intensität des rückgestreuten Signals $P(z, \lambda)$ aus einer Schicht der Dicke Δz ist proportional der Energie des emittierten Laserpulses $P_0(\lambda)$, dem Raumwinkel A/z^2 , den die Teleskopfläche A sieht, der Detektorempfindlichkeit $\eta(\lambda)$, dem geometrischen Überlapp des Gesichtsfeldes von Aussende- und Empfangsoptik $O(z, \lambda)$, und dem Volumenrückstreukoeffizienten $\beta(z, \lambda)$. Schließlich ist sie noch dem Quadrat der Transmission der Atmosphäre $T(z, \lambda)$

$$T(z, \lambda) = \exp\left(-\int_{z_0}^z \alpha(z', \lambda) dz'\right) \quad (4.3)$$

proportional. Die Transmission ist eine Funktion der optischen Dicke der Atmosphäre. Letztere wird durch das Integral der Extinktion $\alpha(z, \lambda)$ über ein Höhenintervall Δz beschrieben, das der Laserpuls auf dem Hin- und Rückweg durch die Atmosphäre durchquert. Der Intensitätsverlust des Laserlichtes ist in der optisch sehr viel dichteren Troposphäre wesentlich höher, als in der Stratosphäre.

4.2 Streuprozesse

Grundlegend für Lidar-Messungen sind Streu- und Absorptions-Prozesse in der Atmosphäre. Photonen wechselwirken auf unterschiedliche Weise mit den Molekülen und Partikeln der Luft. Die Art der Wechselwirkung hängt von der Energie der Photonen, also der Wellenlänge des Lichts, und von der Zusammensetzung und Form der Teilchen ab. Moleküle und Partikel, deren Durchmesser sehr viel kleiner ist als die Wellenlänge des zu streuenden Lichts, zeigen ein anderes Streuverhalten als Partikel gleicher Größenordnung der Wellenlänge des Lichts. Diese Phänomene wurden u. a. von *Rayleigh* (1871) und von *Mie* (1908) untersucht.

4.2.1 Molekülstreuung

Die Streuung an Teilchen, die klein gegenüber der Wellenlänge des gestreuten Lichts sind, wird als Rayleigh-Streuung bezeichnet. In der Atmosphäre erfolgt Rayleigh-Streuung an den Luftmolekülen. Das Streuverhalten wird durch den differentiellen Rayleigh-Streuquerschnitt beschrieben (*Measures, 1984*):

$$\frac{d\sigma_{\text{Ray}}(\theta, \phi)}{d\Omega} = \frac{\pi^2(n^2 - 1)^2}{N^2\lambda^4} \{ \cos^2\phi \cos^2\theta + \sin^2\phi \} \quad (4.4)$$

Hierbei ist λ die Wellenlänge des Lichtes, N die Molekülteilchendichte, n der Brechungsindex, θ der Streuwinkel, ϕ der Polarisationswinkel und $d\Omega$ der infinitesimale Raumwinkel in Streurichtung. Der gesamte Rayleigh-Streuquerschnitt σ_{Ray} wird durch Integration über den Raumwinkel 4π gebildet.

$$\sigma_{\text{Ray}}(\lambda) = \frac{8\pi}{3} \left[\frac{\pi^2(n^2 - 1)^2}{N^2 \lambda^4} \right] \quad (4.5)$$

Da der Rayleigh-Streuquerschnitt umgekehrt proportional zur 4ten Potenz der Wellenlänge ist, wird ultraviolettes Licht sehr viel stärker gestreut als sichtbares Licht.

Für die Lidar Anwendung ist der Rayleigh-Rückstreuquerschnitt von Interesse, also der Anteil, der in einem Winkel von 180° gestreut wird.

$$\frac{d\sigma_{\text{Ray}}(\theta = \pi)}{d\Omega} = \frac{\pi^2(n^2 - 1)^2}{N^2 \lambda^4} \quad (4.6)$$

Der Volumenrückstreukoeffizient $\beta_{\text{Ray}}(\lambda)$ ist das Produkt aus der Anzahl der streuenden Teilchen n_{Ray} und dem Rückstreuquerschnitt

$$\beta_{\text{Ray}}(\lambda) = n_{\text{Ray}} \frac{d\sigma_{\text{Ray}}(\pi, \lambda)}{d\Omega}. \quad (4.7)$$

4.2.2 Partikel-Streuung

Sobald die Ausdehnung der streuenden Teilchen die gleiche Größenordnung wie die Wellenlänge des gestreuten Lichts haben, können sie nicht mehr durch die Rayleigh-Theorie beschrieben werden. Diese Streuung wird Partikelstreuung genannt. Analytische Lösungen dieses Streuproblems existieren nur für wenige spezielle Partikelformen. Die Mie-Theorie beschreibt das Streuverhalten von spärlichen Teilchen (Mie, 1908), wie z. B. Flüssigkeitströpfchen. Mit zunehmender Größe der Partikel verliert die Streufunktion ihre Symmetrie und Vorwärtsstreuung überwiegt. Der differentielle und somit auch der totale Streuquerschnitt $\sigma_{\text{Mie}}(\lambda)$ wird eine komplizierte Funktion der Partikelgröße und des Streuwinkels, siehe z. B. Kerker (1969), van de Hulst (1957). Seine Abhängigkeit von der Wellenlänge des gestreuten Lichts ist in erster Näherung einfach umgekehrt proportional:

$$\sigma_{\text{Mie}}(\lambda) = \text{const.} \lambda^{-1} \quad (4.8)$$

Der Volumenrückstreukoeffizient ergibt sich zu:

$$\beta_{\text{Mie}}(\lambda) = n_{\text{Mie}} \frac{d\sigma_{\text{Mie}}(\theta = \pi)}{d\Omega} \quad (4.9)$$

4.2.3 Raman-Streuung

Bei der Rayleigh- und der Mie-Streuung handelt es sich um elastische Streuprozesse. Elastisch bedeutet, daß der Streuvorgang nur die Richtung der Photonen verändert, nicht aber deren Energie. Die sogenannte Raman-Streuung bezeichnet einen inelastischen Streuprozess. Das gestreute Licht erfährt dabei eine Änderung der Wellenlänge. Klassisch kann ein Molekül als Dipol mit spezifischen Schwingungseigenschaften der Frequenz ν_M betrachtet werden. Trifft eine Lichtwelle auf dieses Molekül, findet eine Wechselwirkung zwischen der Frequenz der Molekülschwingung ν_M und der Frequenz des einfallenden Lichts ν_0 statt. Das Molekül verändert unter dem Einfluß der Feldstärke der Lichtwelle seine Schwingungen.

Das vom Molekül emittierte Licht besteht dann aus der Frequenz des einfallenden Lichts ν_0 und zwei neuen Frequenzen:

$$\begin{aligned}\nu_S &= \nu_0 - \nu_M \\ \nu_{AS} &= \nu_0 + \nu_M\end{aligned}\tag{4.10}$$

die als Stokes- und anti-Stokes-Frequenz bezeichnet werden. Diese Frequenzen werden vom Molekül sofort wieder abgestrahlt. Die Wellenlängenänderung der emittierten Strahlung ist molekulspezifisch.

Spontane und induzierte Raman-Streuung

Bei einer quantenmechanischen Betrachtungsweise muß berücksichtigt werden, daß die Molekülschwingungen nur diskrete Energieniveaus $h\nu_M$ besetzen können. Die Energie eines einfallenden Photons hebt das Molekül aus dem Grundzustand in ein virtuelles Niveau, welches jedoch 'verboten', d.h. instabil ist. Es fällt entweder in den Grundzustand zurück (Rayleigh-Streuung) oder auf das erste angeregte Niveau, wobei ein Photon der Energie $h\nu_S = h(\nu_0 - \nu_M)$ emittiert wird, ein sogenanntes Stokes-Photon. Befindet sich das Molekül bereits im ersten angeregten Energiezustand und wird durch ein Photon in ein virtuelles Energieniveau gehoben, hat es drei Möglichkeiten. Kehrt es in den Ausgangszustand oder einen höheren Zustand zurück, entsteht wiederum Rayleigh- oder Stokes-Streuung. Kehrt es jedoch in den Grundzustand zurück, gibt es seine Schwingungsenergie ab und es wird ein anti-Stokes-Photon der Energie $h\nu_{AS} = h(\nu_0 + \nu_M)$ emittiert. In beiden Fällen handelt es sich um spontane Raman-Streuung, wobei die Stokes-Streuung überwiegt, da sich im thermischen Gleichgewicht mehr Moleküle im Grundzustand befinden als in angeregten Energiezuständen.

Bei einer intensiven Bestrahlung eines Mediums, z.B. mit Laserlicht, entsteht zunächst eine sehr hohe spontane Stokes-Streuung. Dadurch sind sehr viele Stokes-Photonen im Medium vorhanden. Wird ein Molekül nun durch ein einfallendes Photon $h\nu_0$ auf ein virtuelles Niveau gehoben, ist

die Wahrscheinlichkeit hoch, daß eines der spontan emittierten Stokes-Photonen auch auf dieses Molekül trifft und die Emission eines weiteren Stokes-Photons induziert.

Das gleiche gilt für die anti-Stokes-Streuung, da sich bei hoher spontaner Stokes-Streuung sehr viele Moleküle im ersten angeregten Zustand befinden. Jedoch überwiegen auch bei der induzierten Raman-Streuung die Stokes-Photonen aufgrund des überwiegenden Grundzustands der Moleküle vor der Bestrahlung mit Laserlicht (*Bergmann-Schaefer, 1987*).

Raman-Streuquerschnitte

Das Streuspektrum von N₂ bei Anregung mit der Laserwellenlänge 308 nm ist bei *Inaba und Kobayasi (1972)* dargestellt.

Neben der Rayleigh-Linie und der Vibrations-Raman-Linie (erste Stokes-Linie) treten noch weitere Linien, die Rotations-Raman-Linien, zu beiden Seiten der zentralen Linien auf. Sie entstehen durch die Anregung der verschiedenen Rotationsenergieniveaus der Moleküle. Der Raman-Streuquerschnitt der Vibrationsanregung ist um drei Größenordnungen kleiner als der Rayleigh-Streuquerschnitt. Die Raman-Streuquerschnitte der Rotationslinien sind nochmals um drei Größenordnungen geringer als ihre zentrale Wellenlänge.

4.3 Dial-Verfahren zur Bestimmung des Ozonprofils

Ozonmessungen mit dem Lidar werden mittels der Methode der differentiellen Absorption ('Differential absorption lidar', Dial) durchgeführt. Dabei werden Laserpulse zweier eng beieinander liegender Wellenlängen im Ultravioletten gleichzeitig in die Atmosphäre gesandt. Die Laserwellenlänge ist so gewählt, daß sie innerhalb der Absorptionsbanden des Ozons liegt. Die Referenzwellenlänge liegt an deren langwelligeren Flanke (siehe Abbildung 4.1). Die Absorptionsquerschnitte der beiden Wellenlängen unterscheiden sich um zwei Größenordnungen (*Vigroux, 1953*). Aus dem Verhältnis der gemessenen Intensität beider zurückgestreuter Wellenlängen wird der Ozongehalt wie folgt berechnet.

Aus dem Verhältnis der beiden Intensitäten ergibt sich gemäß der Lidargleichung (4.2) für die Laserwellenlänge λ_0 und die Referenzwellenlänge λ_r durch Logarithmieren und Differenzieren nach der Höhe z :

$$\frac{d}{dz} \left[\ln \left(\frac{P(z, \lambda_0)}{P(z, \lambda_r)} \right) \right] = \frac{d}{dz} \left[\ln \left(\frac{(\beta(z, \lambda_0))}{(\beta(z, \lambda_r))} \right) \right] + 2[\alpha(z, \lambda_0) - \alpha(z, \lambda_r)] \quad (4.11)$$

Die Extinktion α jedes Laserpulses wird durch die Rayleigh-Streuung an Molekülen α_{Ray} , der Mie-Streuung an Partikeln α_{Mie} und durch die Absorption durch Ozon α_{O_3} verursacht.

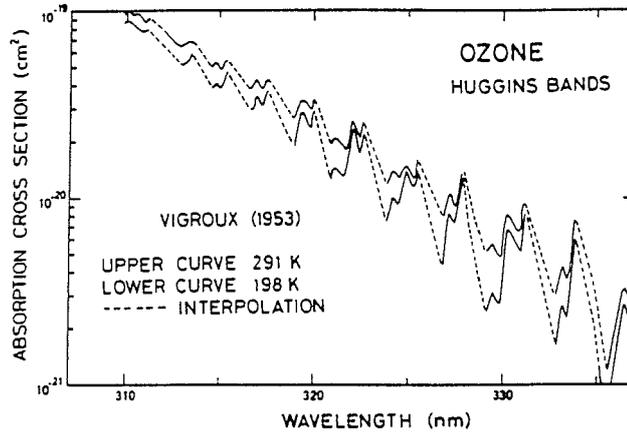


Abbildung 4.1 Huggins-Absorptionsbande des Ozons nach Vigroux, (1953). Aus Brasseur und Solomon (1986).

$$\alpha(z, \lambda) = n_{\text{Ray}}(z) \sigma_{\text{Ray}}(\lambda) + n_{\text{Mie}}(z) \sigma_{\text{Mie}}(\lambda) + n_{\text{O}_3}(z) \sigma_{\text{O}_3}(\lambda) \quad (4.12)$$

Dabei ist n_x die Anzahl der entsprechenden Moleküle und σ_x der zugehörige Extinktionsquerschnitt.

Der Volumenrückstreukoeffizient β setzt sich ebenfalls aus molekularer β_{Ray} und Partikel-Rückstreuung β_{Mie} zusammen.

$$\beta(z, \lambda) = \beta_{\text{Ray}}(z, \lambda) + \beta_{\text{Mie}}(z, \lambda) \quad (4.13)$$

Sowohl bei der Extinktion als auch bei der Rückstreuung ist der durch Partikel verursachte Anteil bei aerosolfreier Atmosphäre vernachlässigbar. Er muß jedoch bei Aerosolbelastung, z. B. nach hochreichenden Vulkanausbrüchen, beim Auftreten von polaren Stratosphärenwolken oder bei Messungen in der Troposphäre korrigiert werden (siehe Beyerle, 1994). Eine Aerosolkorrektur ist bei Messungen mit den Raman verschobenen Wellenlängen nicht notwendig, (siehe Abschnitt 4.3).

Die Anzahl der Ozonmoleküle n_{O_3} berechnet sich zu

$$n_{\text{O}_3} = \frac{1}{2(\sigma_{\text{O}_3}(\lambda_0) - \sigma_{\text{O}_3}(\lambda_r))} \left[\frac{d}{dz} \left(\ln \left(\frac{P(z, \lambda_0)}{P(z, \lambda_r)} \right) - \ln \left(\frac{\beta(z, \lambda_0)}{\beta(z, \lambda_r)} \right) \right) \right] \quad (4.14)$$

Voraussetzung für die Gültigkeit dieser Gleichung ist, daß die Überlappfunktion $O(z, \lambda)$ für

beide Wellenlängen identisch ist, was durch die Geometrie der Aussendetechnik gewährleistet ist.

Raman-Dial

Die Raman-Streuung tritt in der Atmosphäre in meßbarer Intensität durch die Anregung von Sauerstoff-, Stickstoff- und Wasserdampfmolekülen auf. Wasserdampf spielt jedoch nur in der Troposphäre eine Rolle, nicht mehr in der Stratosphäre. Der Hauptanteil (80 %) der trockenen Luft besteht aus Stickstoffmolekülen, so daß von ihnen die größte Intensität an Raman gestreuten Photonen zu erwarten ist. Da dieses Signal nur von der Anzahl der vorhandenen Stickstoffmoleküle abhängt und keine erhöhte Rückstreuung durch Aerosol verursacht wird, kann auch bei aerosolbelasteter Atmosphäre mit zwei Raman-Wellenlängen ein Ozonprofil nach dem Dial-Verfahren abgeleitet werden.

Raman-Lidar-Gleichung

Die Lidar-Gleichung für eine Raman gestreute Wellenlänge λ_R kann folgendermaßen ausgedrückt werden:

$$P(z, \lambda_R) = P_0(\lambda) \frac{A}{z^2} \Delta z O(z, \lambda, \lambda_R) \eta(\lambda_R) \beta(z, \lambda_R) \exp\left(-\int_{z_0}^z \alpha(z', \lambda, \lambda_R) dz'\right) \quad (4.15)$$

Werden die rückgestreuten Signalintensitäten zweier Raman verschobener Wellenlängen λ_{R_1} und λ_{R_2} betrachtet, deren Verhältnis gebildet, und die entstehende Gleichung wiederum logarithmiert und nach der Höhe z abgeleitet, ergibt sich die Anzahl der Ozonmoleküle nach McGee et al. (1993) folgendermaßen:

$$n_{O_3} = \frac{\frac{d}{dz} \left[\ln \left(\frac{P(z, \lambda_{R_2}) \beta(z, \lambda_{R_1})}{P(z, \lambda_{R_1}) \beta(z, \lambda_{R_2})} \right) \right] - n_{\text{Ray}} \Delta \sigma_{\text{Ray}} + \Delta \alpha_{\text{Mie}}}{\Delta \sigma_{O_3}} \quad (4.16)$$

$$\begin{aligned} \Delta \sigma_{O_3} &= \sigma_{O_3}(\lambda_{R_1}) + \sigma_{O_3}(\lambda_1) - \sigma_{O_3}(\lambda_{R_2}) - \sigma_{O_3}(\lambda_2) \\ \Delta \sigma_{\text{Ray}} &= (\sigma_{\text{Ray}}(\lambda_1) - \sigma_{\text{Ray}}(\lambda_2)) + (\sigma_{\text{Ray}}(\lambda_{R_1}) - \sigma_{\text{Ray}}(\lambda_{R_2})) \\ \Delta \alpha_{\text{Mie}} &= \alpha_{\text{Mie}}(\lambda_2) + \alpha_{\text{Mie}}(\lambda_{R_2}) - \alpha_{\text{Mie}}(\lambda_1) + \alpha_{\text{Mie}}(\lambda_{R_1}) \end{aligned}$$

$\Delta \sigma_{\text{Ray}}$ und $\Delta \alpha_{\text{Mie}}$ bezeichnen die differentielle Extinktion aufgrund der Rayleigh- bzw. Mie-Streuung. Der Absorptionsquerschnitt bezüglich Ozon $\sigma_{O_3}(\lambda_{R_1})$ der Ramanwellenlänge ist um eine Größenordnung geringer als der der Laserwellenlänge, da der Absorptionsquerschnitt der zweiten Ramanwellenlänge am Rande der Ozonabsorptionsbande liegt. Die Absorption durch

4. Grundlagen zum Lidar-Meßverfahren

Ozon findet somit nur auf dem Hinweg der Laserwellenlänge, jedoch kaum noch auf dem Rückweg der Ramanwellenlänge statt. Damit verdoppelt sich die Meßdauer im Vergleich zu einem gewöhnlichen Dial-Lidar. Die Größenordnung der Volumenrückstreukoeffizienten $\beta(z, \lambda_R)$ und damit die der Intensitäten der beiden N_2 -verschobenen Wellenlängen ist einen Faktor 10^3 gegenüber den rückgestreuten Laser-Wellenlängen geringer. Aus den unteren, dichteren Schichten der Atmosphäre werden jedoch noch genügend Photonen zurückgestreut, um mit sinnvoller Zeitauflösung ein Ozonprofil zu berechnen.

5. Das Ozon-Lidar

5.1 Lidar-Detektor

Für die Messungen der dynamischen Variationen von Ozonprofilen wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neuer Detektor für das Ozonlidar konstruiert, mit dem alle erwünschten Messungen gleichzeitig durchgeführt werden können. Der Detektor ist für sechs Kanäle konzipiert. Davon sind zwei für die Dial-Messungen des Ozonprofils mit den Wellenlängen 308 nm und 353 nm vorgesehen. Der Kanal für die Wellenlänge 532 nm wird für die Erkennung von Aerosolen und polaren Stratosphärenwolken genutzt. Die weiteren drei Kanäle sind die vom atmosphärischen Stickstoff inelastisch zurückgestreuten Ramanwellenlängen der emittierten Laserpulse bei 332 nm, 385 nm und 607 nm. Das Raman-Signal ist von Aerosolen weitgehend unbeeinflusst und ermöglicht eine Korrektur des Signals der Laserwellenlängen. Eine Aerosol-Korrektur ist besonders bei Messungen in der aerosolreichen Troposphäre notwendig. Die beiden ultravioletten Raman-Kanäle sollen für eine Ozonauswertung nach dem Raman-Dial-Verfahren genutzt werden.

5.2 Laserlichtquellen

Excimer-Laser

Für die Erzeugung von Laserlicht der Wellenlänge 308 nm wird ein XeCl-Excimer-Laser (Modell EMG 150 TMSC, Lambda Physik, Göttingen) verwendet. Es handelt sich hierbei um einen gepulsten Gaslaser mit instabilem Resonator. Die Besetzungsinversion wird durch eine Gasentladung erreicht. Der Laser besteht aus einem Oszillator- und einem Resonatorlaser. Der Oszillator erzeugt einen Strahl schmaler Bandbreite, jedoch geringer Leistung. Der Laserstrahl wird im Resonator unter Beibehaltung seiner Schmalbandigkeit verstärkt. Die spektrale Bandbreite des ausgekoppelten Laserstrahls beträgt 10 pm. Eine geringe spektrale Bandbreite ist für die Tageslichtmessungen notwendig. Die wichtigsten Eigenschaften dieses Lasers sind in Tabelle 5.1 aufgeführt. Ein Teil des Lichtes der Laserwellenlänge wird mittels Ramankonversion in die Referenzwellenlänge für die Dial-Messungen umgewandelt. Dazu wird der Laserstrahl in eine mit

Tabelle 5.1 Technische Daten der eingesetzten Laser

	Excimer-Gaslaser	Nd:YAG-Festkörperlaser
Hersteller	Lambda Physik	Continuum
Typ	EMG 150 TMSC	Nd:YAG 61-30
Wellenlänge (nm)	308	532
Pulsfrequenz (Hz)	max. 40	30
Pulsenergie (mJ)	ca. 150	ca. 190
Pulslänge (ns)	15	5-7
Linienbreite (GHz)	32	30
Divergenz (mrad)	0.2	0.5
Stromversorgung (V)	380	220

Wasserstoff gefüllte Ramanzelle fokussiert. Durch stimulierte Ramanstreuung wird die 1. Stokes Linie bei der Wellenlänge 353 nm emittiert. Auf diese Weise ist gewährleistet, daß die Laserwellenlänge und die Referenzwellenlänge nicht nur gleichzeitig, sondern auch in den gleichen Raumwinkel emittiert werden (Werner et al., 1983).

Nd:YAG-Laser

Zur Erzeugung des Lichts der sichtbaren Wellenlänge 532 nm wird ein Nd:Yag-Laser (NY 61-30, Continuum) eingesetzt. Es handelt sich um einen Festkörperlaser, dessen Medium ein künstlich hergestellter Einkristall aus Yttrium-Aluminium-Granat (YAG) mit eingelagerten dreifach positiven Ionen des Neodyms (Nd) ist. Der Laser verfügt über einen Oszillator und einen Verstärker, die beide mit Xenon-Blitzlampen gepumpt werden. Der relevante Emissionsübergang erzeugt einen Lichtstrahl der Wellenlänge 1064 nm, der mittels eines Verdoppler-Kristalls zur zweiten Harmonischen von 532 nm konvertiert wird. Für den Pulsbetrieb wird ein Spiegel des Resonators mittels eines optischen Verschlusses zeitweise blockiert (Q-Switching). Die Dauer, der so erzeugten Pulse liegt in der Größenordnung von Nanosekunden. Die wichtigsten Eigenschaften dieses Lasers sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst (Continuum, 1990).

5.3 Aufbau des Lidar-Detektors

Der Aufbau des Detektors ist in Abbildung 5.1 schematisch dargestellt. Das Empfangsteleskop besteht aus einem konvexen Spiegel der Brennweite 2400 mm und zwei planen Spiegeln, die der Umlenkung der Photonen in die Detektoreinheit dienen. Der Teleskopspiegel fokussiert das aus

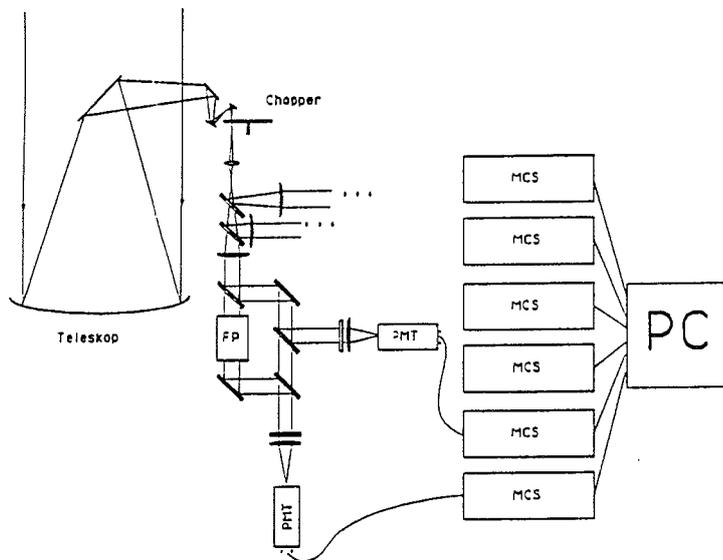


Abbildung 5.1 Schematischer Aufbau des Lidar-Detektors.

der Atmosphäre zurückgestreute Licht auf die Gesichtsfeldblende des Detektors. Sie befindet sich hinter dem ersten Planspiegel in einem aus zwei Spiegeln bestehendem Modul. Hinter der Blende befindet sich der zweite, konvexe Spiegel mit einer Brennweite von 12.5 mm. Er erzeugt ein Bild vom Primärspiegel des Teleskops von 2.7 mm Durchmesser. Genau in diesem Bild schattet eine geeignet konstruierte Chopperscheibe das Signal aus den unteren Höhen der Atmosphäre ab. Dieses Abschatten ist notwendig, um ein Übersteuern des Photomultiplier bei sehr hoher Rückstreuung aus der optisch dichteren Troposphäre zu vermeiden. Auf die Konstruktion dieser Chopperscheibe und ihre Bedeutung für die Erweiterung des Messbereichs in die obere Troposphäre wird im folgenden Unterkapitel gesondert eingegangen.

Am Ausgang des Moduls befindet sich eine Linse der Brennweite $f = 30$ mm. Sie ist für die Parallelisierung des Strahlenbündels notwendig. Im weiteren Strahlverlauf wird das Licht mit Hilfe von zwei dichroitischen Filtern in drei Wellenlängenbereiche aufgespalten und gleichzeitig auf drei einzelne Zweige umgelenkt. Der erste Dichroit ist ein Kurzpassfilter mit einer steilen Kante zwischen 332 nm und 353 nm. Er reflektiert die Wellenlängen 308 nm und 332 nm in den obersten Zweig des Detektors. Der zweite Dichroit reflektiert die Wellenlängen 353 nm und 385 nm und läßt die beiden sichtbaren Wellenlängen 532 nm und 607 nm durch. Die optischen Elemente der drei Zweige sind identisch. Zuerst passiert das Licht eine plankonvexe Linse der Brennweite

$f = 200 \text{ mm}$, die in Kombination mit der Linse des Eingangsmoduls einen parallelen Lichtstrahl erzeugt. Danach wird dieser mittels eines Moduls aus zwei zueinander parallelen Spiegeln, die in einem Winkel von 45° im Strahlengang stehen, parallel versetzt. Diese Spiegelmodule können an anderer Stelle platziert werden, so daß fest eingebaute Tageslichtfilter wahlweise verwendet oder umgangen werden können. Bei der Konfiguration des Detektors für Messungen bei Dunkelheit spiegelt ein weiterer Dichroit die jeweilige Ramanwellenlänge auf einen gesonderten Zweig. Mittels eines Interferenzfilters wird die entsprechenden Wellenlänge nochmals gefiltert und mit einer Plankonvex-Linse der Brennweite $f = 100 \text{ mm}$ wird das Licht auf die Kathode des Photomultiplier fokussiert. Die registrierten Photonen werden an die weiterverarbeitende Elektronik geleitet und ihre Anzahl für jeden Höhenkanal gespeichert.

Chopperscheibe

Damit noch genügend Intensität aus der oberen Troposphäre empfangen wird, wurde eine Chopperscheibe konstruiert, dessen Abschattkante dem exponentiellen Anstieg des Rückstreusignals mit der Luftdichte entgegenwirkt. Die Gestalt dieser Chopperkante wurde mit Hilfe eines synthetischen Rückstreusignals entwickelt. Abbildung 5.2 zeigt zum einen das synthetisches Rückstreusignal, das mit einer geraden Chopperkante abgeblendet wird und zum Vergleich das Signal, welches bei einer 'exponentiell' geformten Kante zu erwarten ist. Der Abschattvorgang des 2.7 mm Bildes mit der 7 mm langen Chopperkante dauert bei einer Umdrehungsfrequenz von 250 Hz und einem Chopperblattradius von $50 \text{ mm} \cdot 12 \cdot 10^{-4} \text{ s}$. Das entspricht einem Höhenintervall von 18.5 km . Üblicherweise befindet sich das Chopperblatt eines Lidars in der Fokusebene des Teleskops, da dort der Strahldurchmesser am geringsten ist und der Abschattvorgang am schnellsten vor sich geht. Für die Berechnung des Ozonprofils nach der Dial-Methode ist es jedoch notwendig, daß die Intensitäten der Rückstreusignale beider UV-Wellenlängen zu jeden Zeitpunkt im gleichen Verhältnis zueinander stehen. Die relativen Änderungen dieses Verhältnisses mit der Höhe ergeben gerade den Ozongehalt (siehe Gleichung (4.16)). Unterscheiden sich die Divergenzen der beiden ausgesandten Laserstrahlen ein wenig, so leuchten sie den Himmel leicht unterschiedlich aus. Im Bild des Himmels in der Fokusebene des Teleskopspiegels kann das Chopperblatt dann kein proportionales Abschatten beider Signale mehr garantieren. Erst wenn der Chopper ganz geöffnet ist, stimmt das Verhältnis der beiden Wellenlängen wieder überein.

Der Primärspiegel des Teleskops empfängt in jedem Punkt seiner Spiegelfläche beide Wellenlängen im gleichen Verhältnis. In einem Bild des Teleskops werden somit auch bei teilweise geöffnetem Chopper beide Wellenlängen immer im gleichen Verhältnis detektiert. Damit dieses Bild für beide Wellenlängen in derselben Ebene liegt, kann aufgrund der chromatischen Aberration keine Linse zur Abbildung verwendet werden. Die sphärischen Aberrationen des Teleskopspiegels und des Spiegels der Brennweite 12.5 mm führen bei dieser Anordnung zu einer geringen Differenz beider Bildebenen von 0.14 mm .

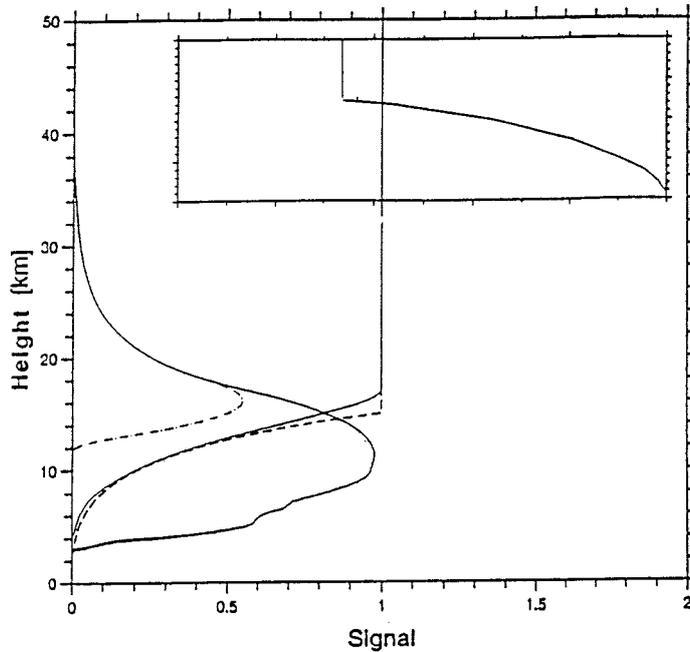


Abbildung 5.2 Synthetisches Rückstreuungssignal bei unterschiedlichen Chopperkanten. Im oberen Teild der Abbildung ist die Form der Chopperkante dargestellt. Nähere Erläuterung im Text.

5.4 Tageslichtmessungen

Lidar-Messungen können am besten bei Nacht durchgeführt werden, da das Signal/Rausch-Verhältnis wesentlich höher ist als am Tage, wodurch die Meßdauer erheblich kürzer wird. Mit geeigneten Filtern sind jedoch auch Messungen bei Tageslicht möglich. Dabei sollte die Meßdauer zur Erstellung eines Ozonprofils die Zeitskala der zu beobachtenden Ozonvariationen nicht überschreiten. Die Ozonvariationen können sehr unterschiedlich sein. Kleinräumige Turbulenz kann innerhalb von Sekunden zu kleinen Änderungen des Ozonprofils führen. Ein Durchzug von Tiefdruckwirbeln verbunden mit Änderungen der Tropopausenhöhe und damit des Ozonprofils findet in synoptischen Skalen der Größenordnung Stunden bis zu einem Tag statt. Bei unveränderter Wetterlage kann das Ozonprofil über mehrere Tage relativ konstant bleiben. Relevante Austauschprozesse zwischen Stratosphäre und Troposphäre sind mit synoptischen Systemen verbunden, so daß eine Meßdauer von wenigen Stunden noch eine Beobachtung solcher Phänomene erlaubt. Die minimale Meßdauer liegt bei Lidarmessungen während der Nacht bei zwei Stunden, wenn der gesamte Höhenbereich bis 50 km erfasst werden soll. Bei Tageslicht-

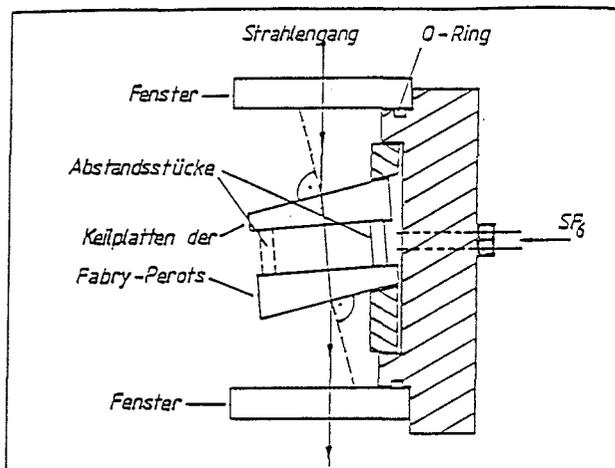


Abbildung 5.3 Schematische Skizze der Fabry-Perot-Etalons. Aus Steinbrecht (1988).

messungen ist mindestens die doppelte oder dreifache Zeit notwendig, um auch noch aus 30 bis 40 km Höhe genügend Photonen zu registrieren. Aus den Höhen um 10 km ist jedoch auch unter Einsatz von Tageslichtfiltern die Photonenzahl schon in einem Zeitraum von einer Stunde ausreichend.

Etalons

Um die Untergrundstrahlung bei Tageslichtmessungen herauszufiltern werden Fabry-Perot-Etalons verwendet. Das Filterprinzip beruht auf der Vielstrahlinterferenz. Zwei parallel angeordnete Quarzplatten werden mittels kleiner Plättchen auf einen bestimmten Abstand voneinander fixiert (Abb. 5.3). Die Lichtwellen treten fast senkrecht durch die eine Quarzplatte in diesen Zwischenraum ein, werden dort an den verspiegelten Innenflächen mehrfach reflektiert und interferieren miteinander. Der Abstand der Platten voneinander bestimmt die Wellenlänge, die nicht durch Interferenz ausgelöscht wird, sondern den Filter passieren kann (Bergmann-Schaefer, 1987).

Die Vielfachen der Durchlaßmaxima liegen sehr weit auseinander, wenn der Plattenabstand im Größenbereich der durchzulassenden Wellenlänge gewählt wird. Werden dann zusätzlich ein oder zwei weitere Etalons hinter das erste gesetzt, deren Plattenabstand so gewählt ist, daß ein Durchlaßmaximum genau da liegt, wie bei dem ersten, die benachbarten Maxima jedoch ein we-

nig verschoben, werden die Nebenmaxima vom nachfolgendem Etalons ausgelöscht. Mit dieser Anordnung wird ein Filter mit einem schmalen Durchlaßmaximum und einer hohen Blockung erreicht (Steinbrecht, 1988). Die Durchlaßwellenlänge wird über die Druckabhängigkeit des Brechungsindex eines den Raum zwischen den Glasplatten ausfüllendes Gases, hier Schwefelhexafluorid (SF_6), abgestimmt. Zu diesem Zweck sind die Etalons in ein Druckgehäuse gebettet.

Um während der Übergangszeit zwischen Polarnacht und Polartag zu jeder Zeit Messungen durchführen zu können, können die oben erwähnten Spiegelmodule, die dem Parallelversatz der Strahlen dienen, wahlweise vor oder hinter die Etalons gesetzt werden. Der modulare Aufbau der Umlenkspiegel erlaubt, diesen Umbau in kurzer Zeit durchzuführen.

5.5 Lidar-Messungen des Ozonprofils

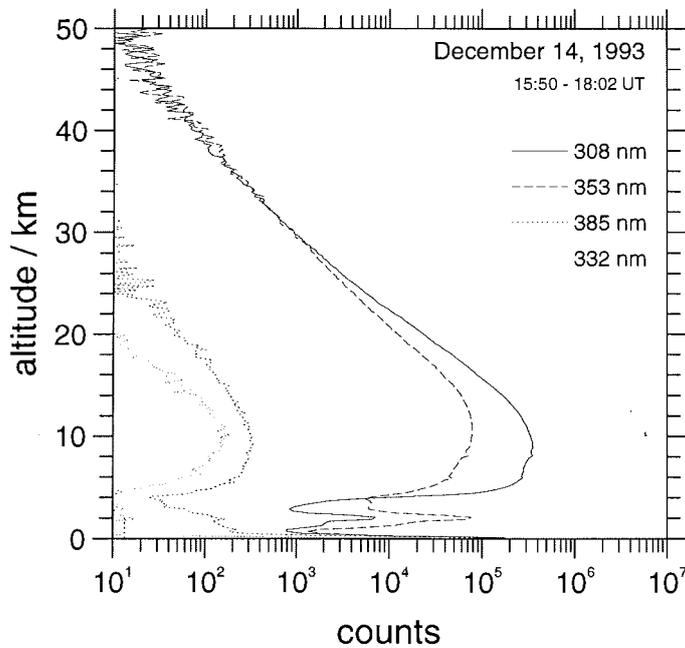
Der Aufbau des Lidar-Detektors wurde im Oktober 1993 rechtzeitig zum Einbruch der Polarnacht abgeschlossen. Am 5. Oktober 1993 konnten bei klarem Himmel die ersten Messungen mit den beiden Dial-Wellenlängen durchgeführt werden. Ende Oktober wurden auch die beiden zugehörigen Ramakanäle in Betrieb genommen. Aufgrund technischer Probleme mit dem Nd:YAG-Laser konnte mit den Messungen im sichtbaren Kanal und dem zugehörigen Ramakanal nicht vor Ende Januar 1994 begonnen werden. Bis Mitte März wurden an 36 Tagen Messungen durchgeführt. In polaren Breiten nimmt die Tageslänge im Laufe des Februars und März täglich um eine ca. eine halbe Stunde zu. Schon Mitte März überwiegt der Anteil an Tageslicht dem der Nacht, da die Dämmerung morgens und abends mit insgesamt mindestens 4 Stunden zu berücksichtigen ist. Am 17. März wurde mit den Tageslichtmessungen begonnen und die Messungen mit dem Ozonlidar wurden bis Ende April 1994 fortgesetzt. Insgesamt konnten an 12 Tagen Tageslichtmessungen durchgeführt werden.

5.5.1 Auswertung der Rückstreusignale

Abbildung 5.4 zeigt ein Beispiel für das Rückstreusignal in den beiden Dial-Kanälen und den zugehörigen Raman-Kanälen während der Polarnacht. Dargestellt ist das über zwei Stunden summierte Rückstreusignal vom 14. Dezember 1993. (Dies entspricht etwa 170 000 emittierten Laserpulsen.) Der Höhenbereich, in dem der Chopper sich öffnet, reicht von 4 km bis ca. 18 km. Die obere Kante des Choppereinflusses auf das Signal ist am Abweichen des Signalverlauf von dem physikalischen Abfallen zu erkennen, bzw. in der hier gewählten logarithmischen Darstellung von einer Geraden. Der Einfluss der Absorption durch das stratosphärische Ozon auf das Signal im 308 nm-Kanal macht sich in der geringeren Steigung des entsprechenden Rückstreusignals bemerkbar. Die Zählraten in den beiden Ramakanälen sind um einen Faktor 10^3 geringer als die Zählraten in den Laserkanälen. Damit liegen sie in der erwarteten Größenordnung (Ansmann et al., 1990).

Sämtliche Lidarmessungen konnten nur oberhalb des Höhenbereichs ausgewertet werden, ab

Ozone LIDAR Ny-Ålesund/Spitsbergen (79° N,12° E)



summed data

raw data (compr.): 93121415.05M

	308 nm	353 nm	385 nm	332 nm
height of maximum:	8.90	10.70	9.30	10.10 km
max. count rate:	10.27	2.26	0.01	0.01 cts/km/p.
signal (15 km):	3.60	1.40	0.01	0.00 cts/km/p.
background:	0.00	0.00	0.00	0.00 cts/km/p.
number of pulses:	173000	173000	156000	172000

Abbildung 5.4 Exemplarisches Lidar-Rückstreusignal vom 14.12.1993.

dem der Chopper vollständig geöffnet war. In dem Bereich, in dem der Chopper das Bild des Teleskops nur teilweise abschattet, führte die Auswertung nicht zu den angestrebten Ergebnissen. Diese Grenze liegt typischerweise bei 20 km Höhe. Ein Beispiel für das Ergebnis der Ozonauswertung ist in Abbildung 5.5 dargestellt. Der Vergleich mit dem Profil des Ozonsondenaufstiegs am selben Tag zeigt eine gute Übereinstimmung der beiden Meßmethoden im Bereich von 20 bis 30 km Höhe. Unterhalb von 20 km liefert das Lidarrückstreusignal unbrauchbare Ergebnisse. Dieses Verhalten kann nur das Resultat einer Unproportionalität der Rückstreusignale in den beiden Dial-Wellenlängen sein. Eine Ursache für dieses unproportionale Verhältnis ist in der Abbildung des Teleskopspiegels in die Chopperebene zu suchen. Sobald das Chopperblatt nicht genau in

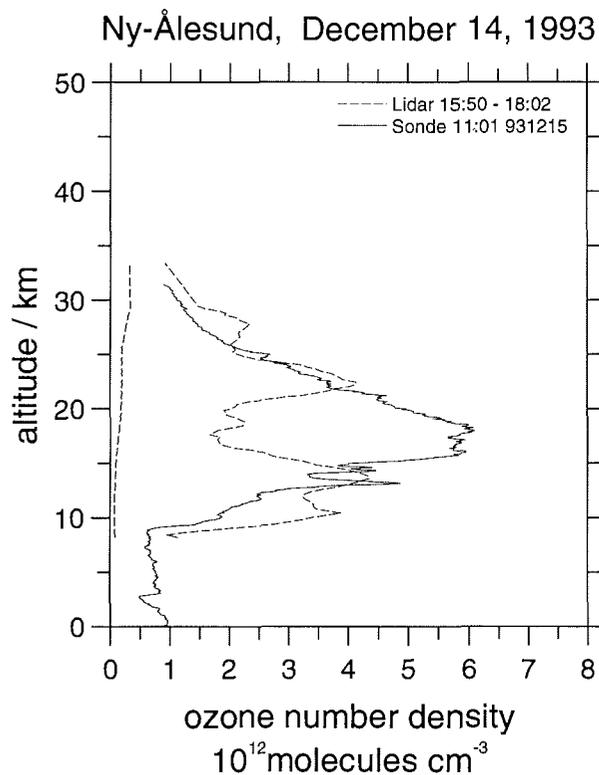


Abbildung 5.5 Exemplarische Ozonauswertung des Lidar-Signal vom 14.12.1993.

der Bildebene des kleinen-konvexen Abbildungsspiegels im Eingangsmodul liegt, werden die beiden Wellenlängen nicht in gleichen Verhältnis abgeschattet. Da dieses Bild nur während der Justage mit Hilfe eines HeNe-Lasers sichtbar ist und nicht während des Meßbetriebs kontrolliert werden kann, ist es nicht möglich zu entscheiden, ob die unzureichende Qualität der Messungen auf diese mögliche Fehlerquelle zurückzuführen ist. Zudem gestaltete sich die Justage des Detektors aufgrund der Enge im Teleskopraum des Lidarcontainers sehr schwierig. Zwischen Detektor und Containerwand war nur noch wenig Raum, so daß die optischen Komponenten des Detektors schwer zugänglich waren. Prinzipiell war die Justage im Rahmen der traditionellen Lidarmessungen unproblematisch, was sich in den guten Messergebnissen oberhalb der

Chopperschwelle dokumentiert. Sollen jedoch das Verhältnis der beiden Dial-Wellenlängen bei teilweise geschlossenem Chopper korrekt auf die Photomultiplier abgebildet werden, ist eine Justage höherer Präzision erforderlich. Bei einem geringen Unterschied der Divergenzen der beiden ausgesandten Laserstrahlen, können die beiden Wellenlängen unterschiedlich auf die einzelnen Komponenten des optischen Aufbaus im Detektor treffen. Da der Strahldurchmesser innerhalb des Detektors nur wenig geringer war als der Durchmesser der Optiken, könnte es zu einer Ausblendung der Randstrahlen durch die Halterungen der Optiken gekommen sein. Vor allem bei den Komponenten, die in einem Winkel von 45° zum Strahlengang stehen, ist eine solche Fehlerquelle denkbar.

Die Messungen der Raman verschobenen Wellenlängen sind besonders von dem oben beschriebenen Problemen betroffen. Ihre geringe Signalintensität führt auch bei mehrstündigen Messungen nur bis in Höhen um 20 km zu einer auswertbaren Photonenzahl. Gerade in diesem Bereich war der Chopper noch nicht vollständig geöffnet. Somit standen keine Messungen in den Raman-Kanälen für eine Raman-Dial-Auswertung zur Verfügung.

5.5.2 Ergebnisse

Um im weiteren Verlauf des Winters den auswertbaren Höhenbereich des Rückstreusignals zu vergrößern, wurde Anfang März ein neues Chopperblatt mit einer geraden Kante in den Detektor eingebaut. Ein Chopper mit gerader Kante öffnet bei einer Umdrehungsfrequenz von 250 Hz über einen Höhenbereich von 5 km. Er konnte entsprechend so eingestellt werden, daß die Auswertung der Rückstreusignale ab ca. 10 km Höhe ermöglicht wurde.

Die Lidarmessungen wurden in diesem Winter bis Ende April 1994 durchgeführt. Dadurch konnte erstmals das Aufbrechen des Polarwirbels im Zuge der Frühjahrserwärmung der polaren Stratosphäre über Ny-Ålesund mit dem Ozonlidar beobachtet werden. Ein Konturenplot der Ozonprofile, die aus den Lidarmessungen im März und April 1994 (überwiegend im Tageslichtmodus) gewonnen wurden, ist in Abbildung 5.6 dargestellt.

Verglichen mit den Ozonsondenaufstiegen stimmen die Lidarprofile im auswertbaren Höhenbereich gut mit den Sondenprofilen überein. Die obere Grenze der Lidarmessungen wandert aufgrund der abnehmenden Signalintensität bei den Tageslichtmessungen mit fortschreitender Zeit weiter nach unten. Am 5. und 6. April wurde ein Ozonminimum in 14 km Höhe beobachtet, das von den Sondenmessungen nicht in gleichem Maße wiedergegeben wird. Dazu ist zu bemerken, daß die Lidarprofile zu diesem Zeitpunkt mit einer zeitlichen Auflösung von 1 Stunde berechnet worden sind. Diese Messungen ermöglichen eine Untersuchung der Variationen in der Ozonprofilstruktur beim Aufbrechen des Polarwirbels. Die damit verbundenen dynamischen Prozesse bei der Stratosphärenenerwärmung im Frühjahr 1994 werden im Kapitel 6 ausführlich diskutiert.

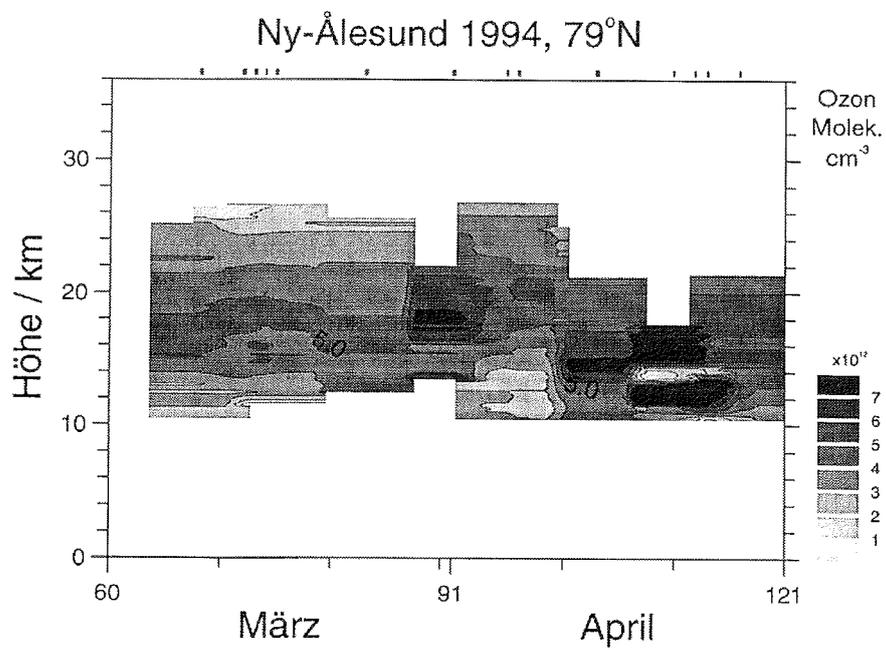


Abbildung 5.6 Konturenplot der Ozonkonzentration über Ny-Ålesund, berechnet aus Tageslichtmessungen des Ozonlidars im März und April 1994.

6. Ozonprofile während der Stratosphärenenerwärmung im Frühjahr 1994

Die westliche Winterzirkulation in der polaren Stratosphäre wird jedes Frühjahr mit einer Erwärmung der Luftmassen über den Polargebieten beendet, und die sommerliche Zirkulation mit schwachen, östlichen Winden setzt sich durch. Das Einsetzen dieser Frühjahrserwärmung kann von Anfang März bis Mitte Mai stattfinden. In einigen Wintern werden jedoch auch kleinere oder größere Erwärmungen der polaren Stratosphäre mitten im Winter beobachtet. *Labitzke* und *Loon* (1988) haben die nordhemisphärischen winterlichen Temperaturen und die Zirkulation in der Stratosphäre seit 1950 statistisch untersucht. Sie stellten eine starke Korrelation zwischen der Phase der 'quasi-biennial oscillation' (QBO), dem 11-jährigen der Sonnenfleckenzyklus und dem Auftreten einer mittwinterlichen Erwärmung im Januar oder Februar jedes Jahres fest. Die QBO ist eine in den Tropen beobachtete Schwingung des stratosphärischen Windregimes von westlichen und östlichen Phasen des zonalen Windes. Die Klassifizierung in West- oder Ostphase der QBO von *Labitzke* und *Loon* (1988) orientiert sich an der Temperatur am Nordpol in 30 hPa und dem zonal gemittelte Wind in 60° Breite. Diese Schwingung hat eine mittlere Periode von 26 Monaten. Sie tritt im Höhenbereich zwischen 16 km und 30 km auf und entsteht durch das Zusammenwirken von sich vertikal ausbreitenden äquatorialen Wellen mit dem zonalen Grundstrom (*Lindzen, 1990*). Beide Regime, die Ost- und die Westphase der QBO, breiten sich von oben nach unten hin aus (*Lindzen und Holten, 1968; Holten und Lindzen, 1972*), wobei die Westwindphase immer länger andauert als die Ostwindphase (Abbildungen 6.1 und 6.2). Wenn sich die tropische Zirkulation in der Westphase und die Sonnenaktivität im Maximum befand, kam es seit 1950 in sieben Wintern zu einer starken mittwinterlichen Erwärmung und einem Zusammenbruch des arktischen Polarwirbels, d. h. einer Umstellung der polaren stratosphärischen Zirkulation von West nach Ost (Abbildung 6.3). Befand sich die QBO in der Ostphase, kam es bisher vorwiegend während des Minimums der Sonnenaktivität zu mittwinterlichen Erwärmungen. Eine Ausnahme bilden die beiden Ereignisse in den Jahren 1957 und 1971. Kleinere Warmluftvorstöße in der winterlichen polaren Stratosphäre, die nicht zu einem Zusammenbruch des Polarwirbels führen, treten häufiger auf.

Durch welchen Mechanismus die QBO die Zirkulation der polaren Stratosphäre moduliert, ist

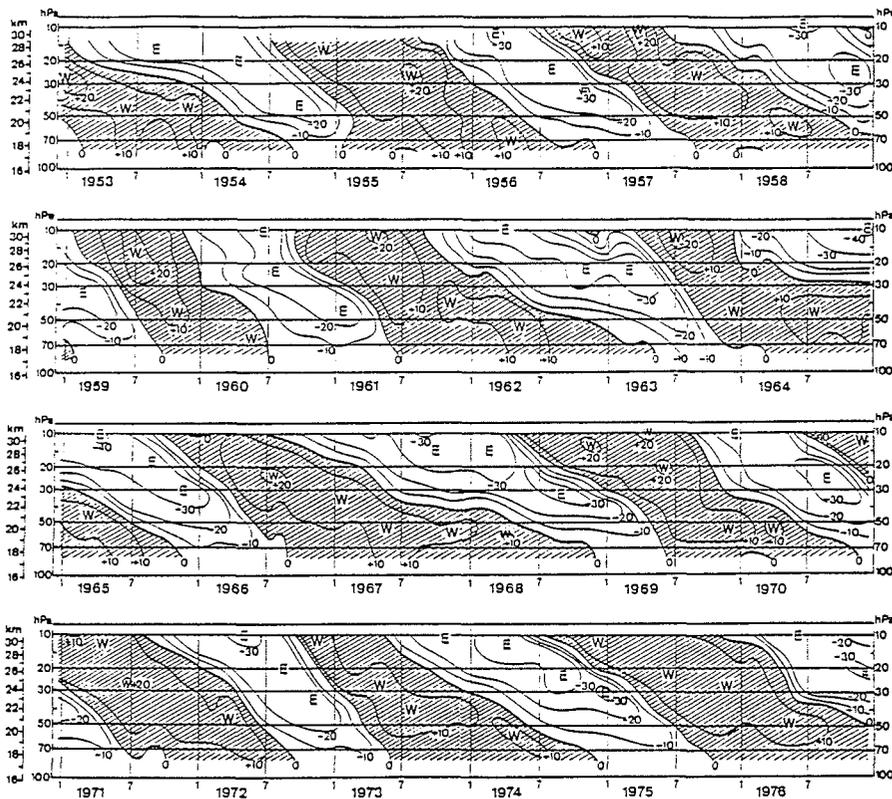


Abbildung 6.1 Die Entwicklung der 'quasi-biennial oscillation' (QBO) von 1953 bis 1976 (Naujokat, persönliche Mitteilung, 1995). Aufgetragen ist die mittlere zonale Windgeschwindigkeitskomponente in m/s in Abhängigkeit von der Höhe und der Zeit.

6. Ozonprofile während der Stratosphärenwärmung im Frühjahr 1994

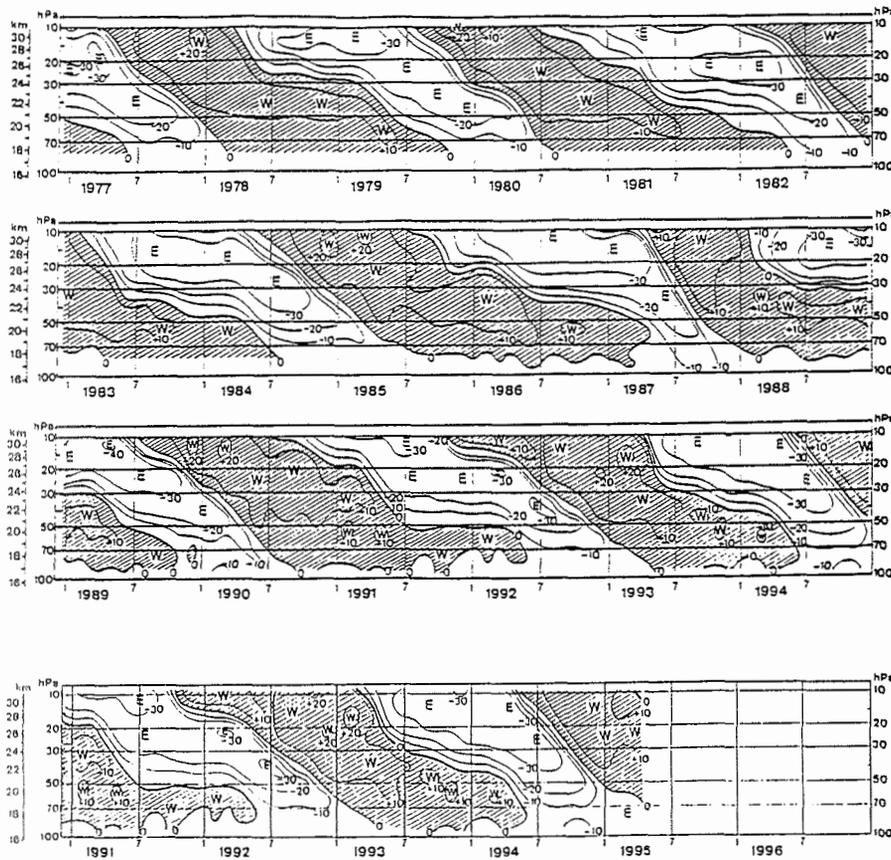


Abbildung 6.2 Die Entwicklung der 'quasi-biennial oscillation' (QBO) von 1977 bis 1994 und aktualisiert von 1991 bis 1995 (Naujokat, persönliche Mitteilung, 1995). Aufgetragen ist die mittlere zonale Windgeschwindigkeitskomponente in m/s in Abhängigkeit von der Höhe und der Zeit.

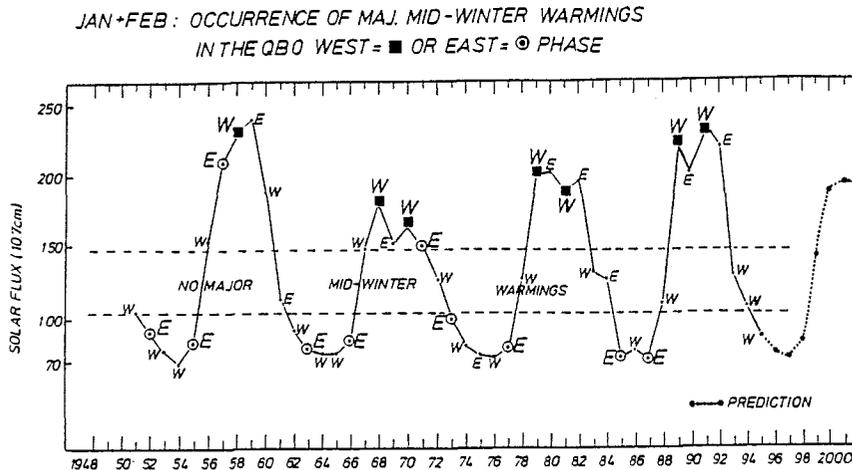


Abbildung 6.3 Zeitreihe des mittleren solaren Flusses bei 10.7 cm im Januar und Februar. W und E bezeichnen die Phase der QBO in 50 und 40 hPa im Januar und Februar, die Kreise und Quadrate bezeichnen große mittwinterliche Erwärmungen im Januar und Februar (Naujokat, persönliche Mitteilung, 1995).

bisher noch nicht eindeutig geklärt. Kodera (1991) vermutet, daß die QBO im Frühwinter Anomalien des zonalen Windes in der oberen Stratosphäre verursacht, wodurch die Ausbreitung von planetaren Wellen beeinflusst wird. Wechselwirkungen zwischen den planetaren Wellen und dem zonalen Grundstrom produzieren dann Störungen, die sich im Verlaufe des Winters in der unteren polaren Atmosphäre auswirken. Numerische Experimente von Kodera et al. (1991) zeigen, daß die Temperaturen am Nordpol bei zunehmender Einstrahlung und westlicher QBO zunehmen, bei östlicher QBO jedoch abnehmen. Die Entwicklung der zonalen Winde bei schwacher und starker Einstrahlung sowie beider Phasen der QBO unterstützen die These von Kodera (1991), daß die Modulation der winterlichen Stratosphäre durch die Sonnenaktivität und die QBO auf Wechselwirkungen planetarer Wellen mit dem zonalen Grundstrom beruht. Die Ergebnisse dieser Modelle stimmen mit der Statistik von Labitzke und Loon (1988) überein.

6.1 Die Entwicklung des Polarwirbels im Winter 1993/94

Im Winter 1993/94 kam es mehrmals zu Erwärmungen in der arktischen Stratosphäre. Im Dezember und Januar fanden sie über Nordostasien, Kanada und Alaska statt, wobei der Polarwirbel in die europäische Arktis verschoben wurde. Im Februar trat eine der seltenen Erwärmungen

über der nordatlantischen und europäischen Arktis auf. Die planetare Wellenzahl 2 konnte sich verstärken und der Polarwirbel wurde in zwei Zentren gespalten. Eines der Zentren lag über der sibirischen Arktis, das andere und das Kaltluftzentrum über der kanadischen Arktis. Mit diesem Warmluftvorstoß wurden ozonreiche Luftmassen bis in sehr hohe Breiten transportiert. Am 14. Februar 1994 wurde in Ny-Ålesund eine Ozonsäulendichte von 406 DU gemessen (Abbildung 6.4). Die Frühjahrserwärmung setzte bereits Anfang März über Nordostasien ein. Der kalte Wirbel wurde erneut in die europäische Arktis verschoben, was dort zu niedrigen Temperaturen und niedrigem Ozongehalt führte. Ein zweiter Warmluftvorstoß Ende März erreichte fast schon den Nordpol. Die PV-Karte vom 28. März 1994 zeigt jedoch, daß der Polarwirbel noch besteht. Anfang April setzt sich die Warmluft im gesamten Polargebiet durch. Die Umstellung auf die Sommerzirkulation ist damit sehr früh abgeschlossen (Naujokat et al., 1994).

6.2 Beobachtungen der Stratosphärenenerwärmung

6.2.1 Temperaturprofile

Die Stratosphärenenerwärmung im Frühjahr 1994 konnte über Ny-Ålesund Anfang April in Temperatur- und Ozonprofilen erkannt und beobachtet werden. Abbildung 6.5 zeigt am 24. März 1994 noch kalte, winterliche Temperaturen, die sich am 28. März 1994 in der unteren Stratosphäre von 9 bis 22 km um bis zu 10°C erhöhen. Am 30. März 1994 ist die Tropopause in 10 km Höhe wieder um 5°C auf -65°C abgekühlt, jedoch schon am 31. März 1994 nimmt die Temperatur nochmal um 5°C im gesamten Höhenbereich von 9 bis 22 km zu. Am 3. April 1994 ist dann ein Temperaturanstieg auf -50°C bis einschließlich 30 km zu beobachten. Die Tropopause ist mit einem Temperaturminimum von -60°C deutlich erkennbar. Während des Winters zeichnete sie sich durch eine Abschwächung des vertikalen Temperaturgradienten aus, nicht durch eine Umkehrung. Auch am 6. April 1994 bleibt dieses für die sommerliche polare Stratosphäre charakteristische Temperaturprofil erhalten. Es ändert sich den Sommer über nur minimal. Die Temperaturen liegen dann im Bereich von -40°C. Erst im September 1994 beginnt sich die Stratosphäre wieder abzukühlen.

6.2.2 Ozonprofile

Für den gleichen Zeitraum im Frühjahr 1994 sind die vertikalen Verläufe der Ozonteilchendichten in Abbildung 6.6 dargestellt. Im Februar und März dieses Winters entsprechen sie dem typischen winterlichen Profil mit einem starken Ozonanstieg oberhalb der Tropopause von ungefähr $1 \cdot 10^{12}$ Moleküle cm^{-3} auf 6 bis $8 \cdot 10^{12}$ Moleküle cm^{-3} im Ozonmaximum in 15 bis 20 km Höhe. Ein Ozonprofil dieser Struktur wurde auch am 24. März 1994 beobachtet. Die gesamte Ozonsäule beträgt 317 DU, ein typischer Wert für diese Jahreszeit. Am 28. März 1994 treten bereits erste, kleinere Strukturen in der Ozonteilchendichte in der unteren Stratosphäre

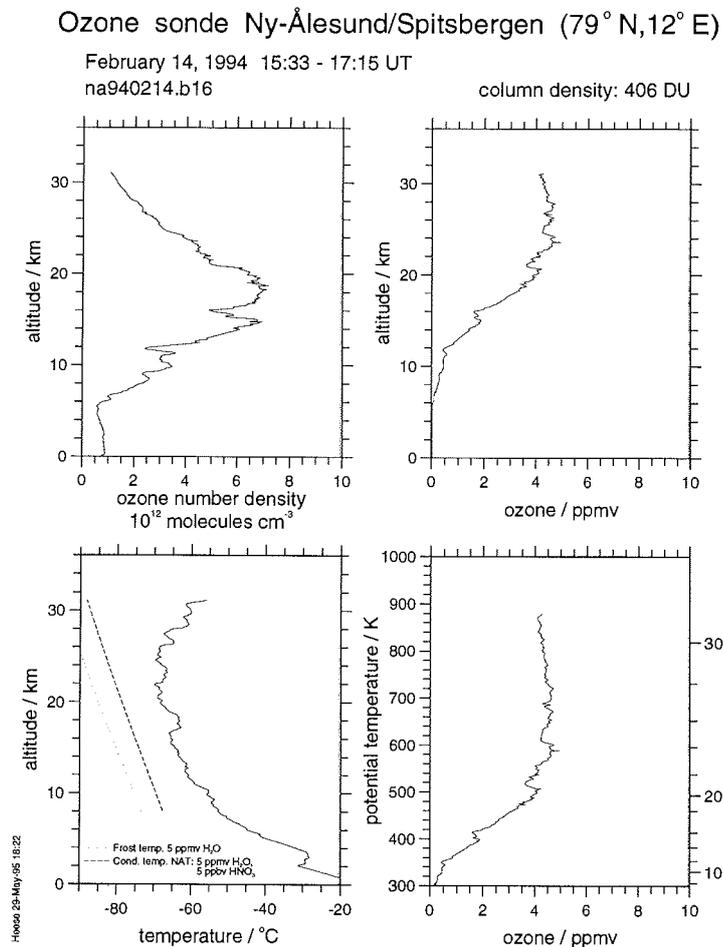


Abbildung 6.4 Ozon- und Temperaturprofil vom 14.02.1994 über Ny-Ålesund. Die Profile wurden von einer Ozonsonde aufgenommen.

6. Ozonprofile während der Stratosphärenenerwärmung im Frühjahr 1994

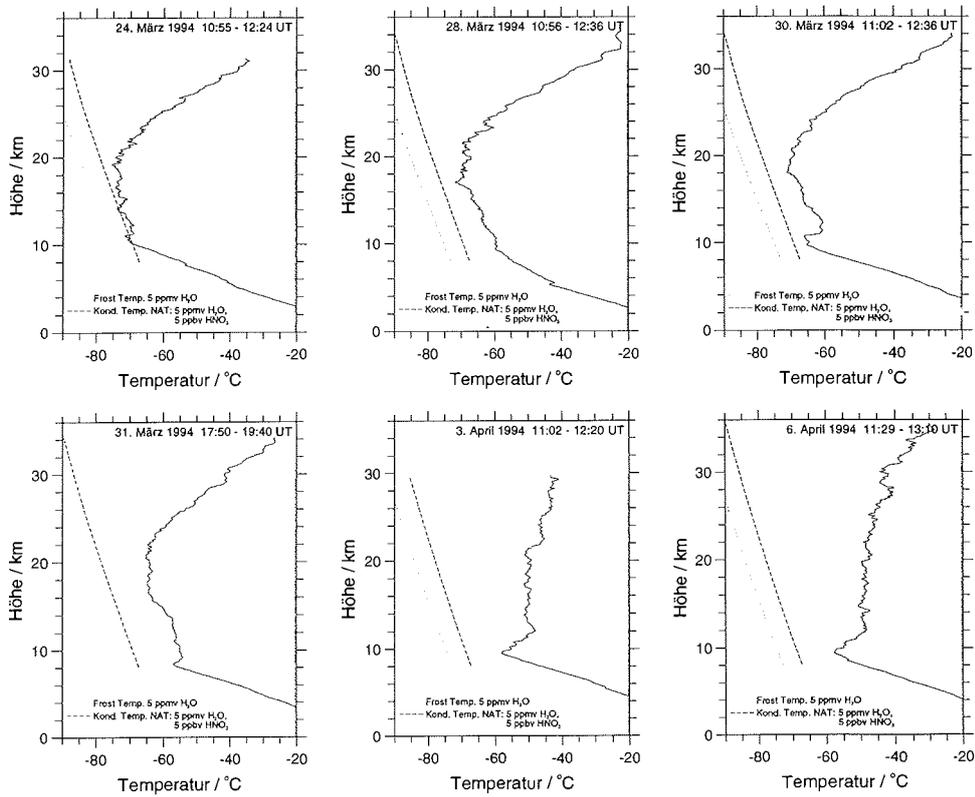


Abbildung 6.5 Temperaturprofile vom 24.03. bis 6.04.1994 über Ny-Ålesund. Die Profile wurden mit Radiosonden aufgenommen, die mit einem Ozonsonden-Aufstieg verbunden waren.

6.2 Beobachtungen der Stratosphärenenerwärmung

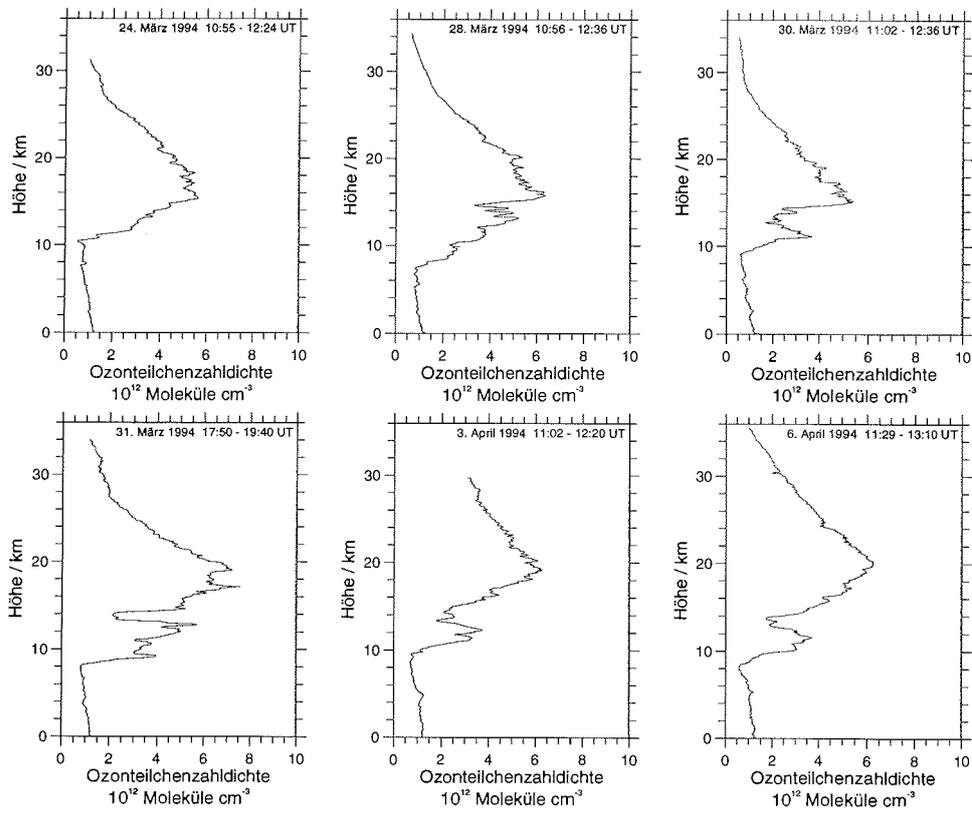


Abbildung 6.6 Ozon-Konzentrationsprofile vom 24.03. bis 6.04.1994 über Ny-Ålesund. Die Profile wurden mit Ozonsonden aufgenommen.

auf. Am 30. März 1994 hat sich ein deutliches Maximum im Bereich von 11 km Höhe und ein Minimum bei 14 km gebildet. Der Gesamtzongehalt geht auf 257 DU zurück. Am nächsten Tag hat sich das Maximum vertikal auf eine Schicht von 4 km Mächtigkeit verbreitert und weitere, kleine Strukturen ausgebildet. Das Minimum darüber ist sehr schmal geworden. Am 3. April 1994 ist wieder ein Maximum in 12 km Höhe und darüber ein Minimum bei 14 km zu beobachten. Ähnlich ist das Bild am 6. April 1994. Zudem nimmt die Ozonteilchenzahldichte in der mittleren Stratosphäre oberhalb von 20 km seit dem 31. März 1994 deutlich zu. Der Gesamtzongehalt steigt auf über 400 DU.

6.2.3 Lidar-Messungen

Die Entwicklung eines dieser sekundären Maxima konnte mit dem Ozonlidar in den Nächten vom 5. und 6. April 1994 über mehrere Stunden mit einer zeitlichen Auflösung von einer Stunde beobachtet werden (siehe Kapitel 5.5.2). Abbildung 6.7 zeigt die Ozonprofile der Lidarmessungen und des Sondenaufstiegs am 6. April 1994. Die Entwicklung des Maximums in 12 km Höhe kann deutlich verfolgt werden. Um 20:00 Uhr UTC hat sich bereits ein Minimum in 14 km Höhe ausgeprägt. Das Maximum ist jedoch noch nicht in 11 km Höhe zu sehen, sondern deutet sich in 10 km unterhalb des erfassten Messbereichs an. Im Laufe der Nacht wandert es nach oben und ist um 02:00 Uhr in ca. 12 km Höhe zu erkennen. In der darauffolgenden Nacht beginnen die Lidarmessungen kurz nach 19:00 und dauern bis 23:00 an. In allen vier Profilen ist kein sekundäres Maximum mehr oberhalb der Tropopause auszumachen.

6.2.4 PV-Karten

Die Position des Polarwirbels in verschiedenen Höhengniveaus kann mittels Karten der potentiellen Vorticity auf isentropen Flächen wiedergegeben werden. Abbildung 6.8 zeigt die Entwicklung des Wirbels auf dem Niveau 475 K im Laufe der Stratosphärenenerwärmung im Frühjahr 1994. Am 24. und 28. März 1994 hat der Wirbel noch eine kreisähnliche Struktur und die Wirbelstärke ist im inneren Kern größer als 50 PVU. Spitzbergen liegt eindeutig innerhalb des Wirbelkerns. Am 30. und 31. März 1994 ist bereits ein langgezogener Wirbel entstanden, der sich von der kanadischen Arktis bis zur sibirischen Arktis erstreckt. Ny-Ålesund liegt jetzt im Wirbelrandbereich bei 36 bis 43 PVU. Am 3. und 6. April 1994 ist der Wirbel in zwei Teile zerbrochen und schwächt sich deutlich zu Werten zwischen 43 und 50 PVU in den Restkernen ab. Ny-Ålesund liegt außerhalb dieser zwei schwachen Wirbel in einer Zone mit schwachem PV-Gradienten bei 21 bis 28 PVU.

In der untersten Stratosphäre im isentropen Niveau von 315 K (Abbildung 6.9) ist eine ganz andere Struktur der potentiellen Vorticity zu beobachten. Es gibt keine homogenen, kreisförmigen oder ovalen Strukturen, sondern es treten viele Zungen und einzelne, kleinere Wirbel mit relativ starken PV-Gradienten auf, die bis in die mittleren Breiten reichen.

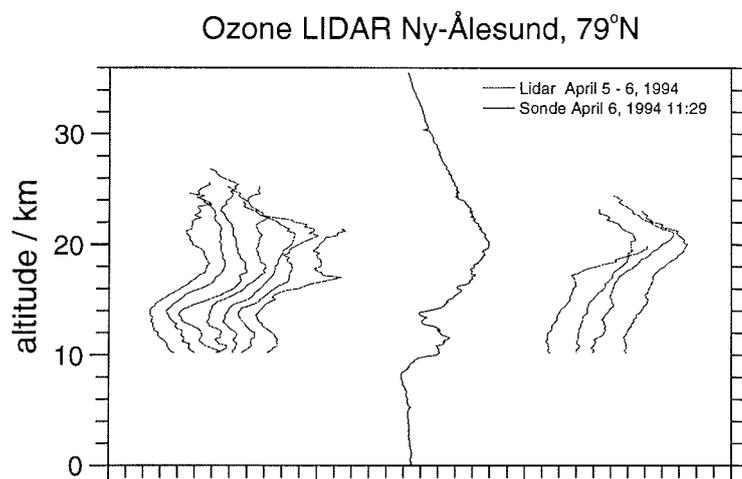


Abbildung 6.7 Ozonprofile aus Lidar-Messungen vom 5.04.1994 und 6.04.1994 und einem Ozonsondenaufstieg vom 6.04.1994 (mitte) über Ny-Ålesund. Dargestellt ist die zeitliche Entwicklung innerhalb von 30 Stunden. Dabei sind die Zeiträume ohne Messungen ausgespart. Die Lidarprofile wurden jeweils über eine Stunde integriert. Das erste Profil am 5.04.1994 wurde ab 19:00 aufgenommen, das letzte um 00:02. Die Lidar-Messungen am Abend des 6.04.1994 beginnen um 19:00.

Am 24. März liegt Ny-Ålesund auch in diesem Niveau innerhalb eines Bereichs hoher potentieller Vorticity. Dasselbe gilt für den 28. März. Am 30. und 31. März 1994 ist der PV-Gradient bedeutend schwächer. In den darauffolgenden Tagen bleibt der Gradient schwach und Ny-Ålesund liegt in einem Gebiet mit etwa 4 PVU. Erst ab dem 4. April 1994 bewegt sich wieder eine Zone höherer potentieller Vorticity über Spitzbergen, die Werte steigen jedoch auch am 6. April 1994 nicht höher als 6 PVU an.

6.2.5 Trajektorien

In Abbildung 6.10 sind die Rückwärtstrajektorien auf den isentropen Niveaus von 350 K bis 675 K an zwei Tagen, dem 28. März 1994 und dem 6. April 1994, exemplarisch dargestellt. Die Trajektorien wurden von *B. Knudsen* am Dänischen Meteorologischen Institut (DMI), Kopenhagen, aus den 12:00 UTC Analysen des European Center for Medium-range Weather Forecast (ECMWF) in Reading, Großbritannien, im Zuge der SESAME-Kampagne für 10 Tage zurück berechnet. Die

6. Ozonprofile während der Stratosphärenwärmung im Frühjahr 1994

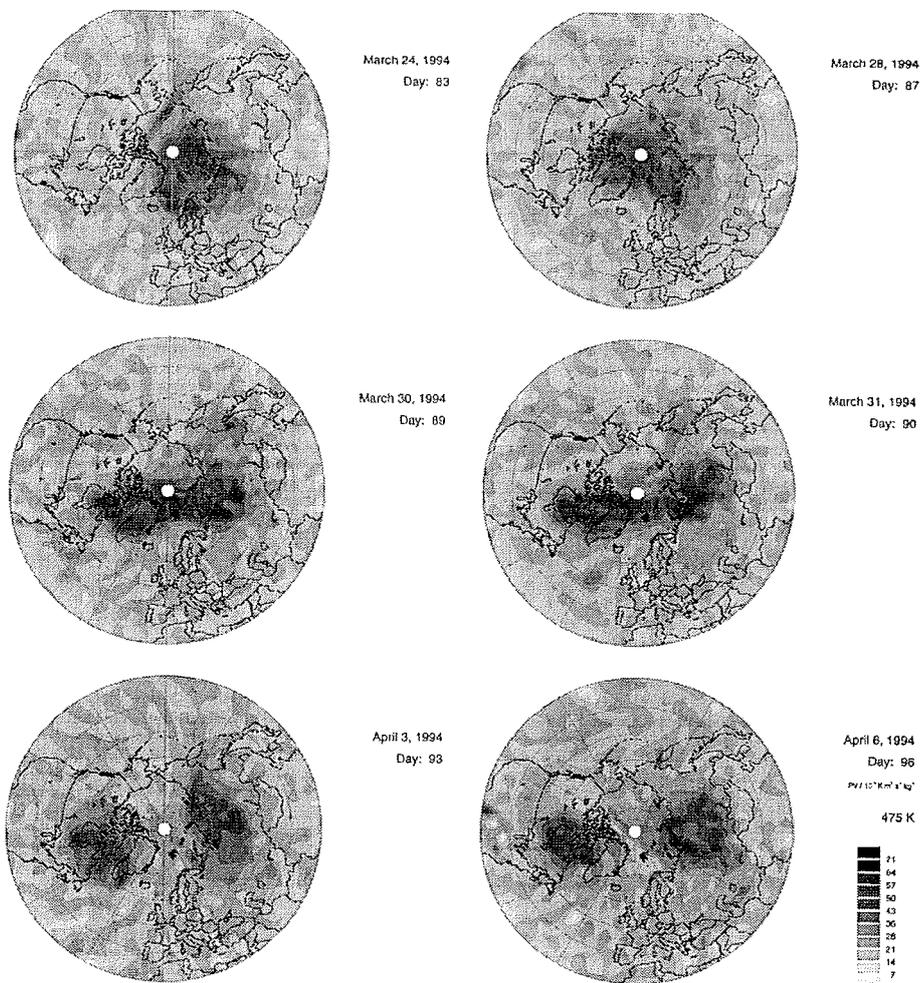


Abbildung 6.8 Potentielle Vorticity im 475 K Niveau vom 24.03. bis 6.04.1994.

6.2 Beobachtungen der Stratosphärenerwärmung

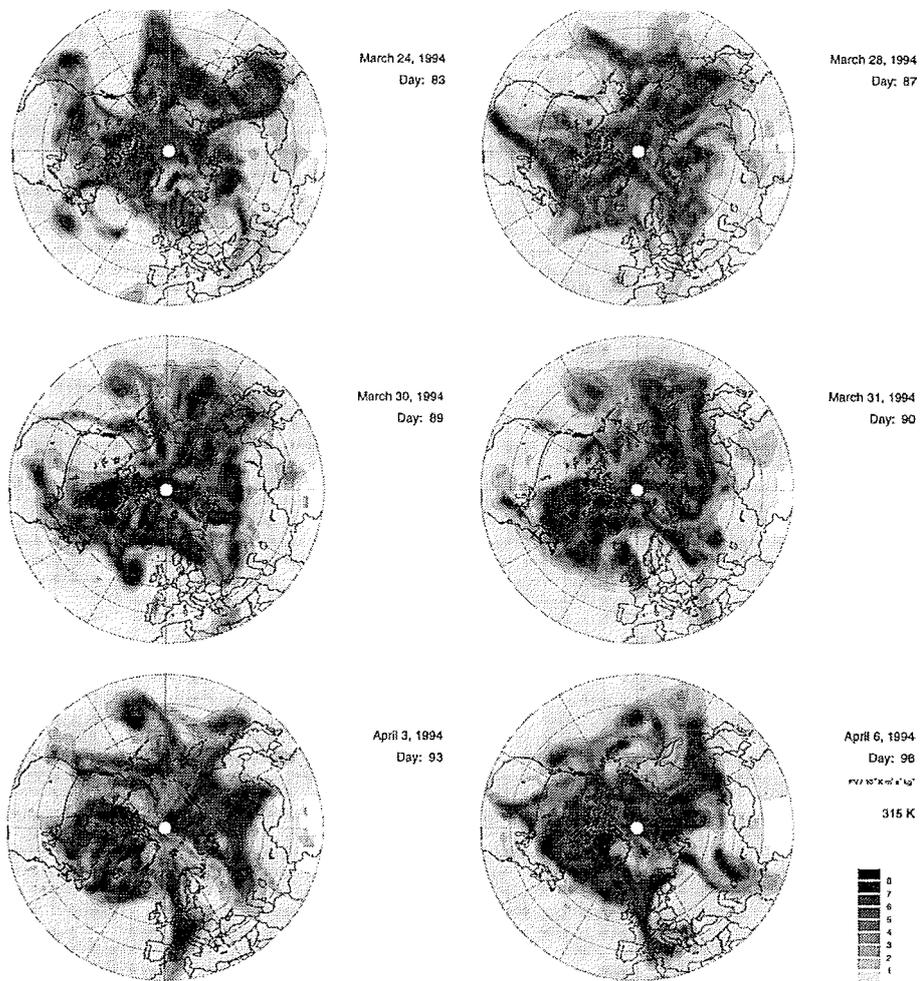


Abbildung 6.9 Potentielle Vorticity im 315 K Niveau vom 24.03. bis 6.04.1994.

6. Ozonprofile während der Stratosphärenwärmung im Frühjahr 1994

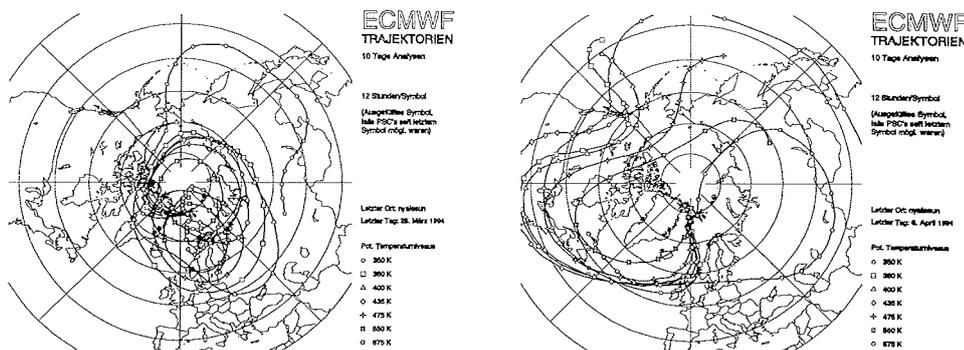


Abbildung 6.10 ECMWF-Trajektorien.

Trajektorien verlaufen am 28. März größtenteils noch innerhalb des geschlossenen Polarwirbels. Am 6. April verlaufen die Trajektorien aus der Kanadischen Arktis über Nordamerika und den über den Nordatlantik. Die Luftmassen, die am 6. April in Ny-Ålesund enden, kommen von Süden aus den mittleren Breiten. Der Fehler der Trajektorien vergrößert sich, je weiter sie zurückliegen. Nach *Knudsen* (1992b) ist der Fehler der Trajektorienbahn außerhalb des Polarwirbels doppelt so groß wie innerhalb. Quantitativ bewegt sich der Fehler in der Größenordnung von 9% der zurückgelegten Entfernung im 475 K Niveau.

6.3 Strukturen im vertikalen Ozonprofil

Ozonprofile weisen häufig nicht nur *ein* ausgeprägtes Maximum in der Stratosphäre auf, sondern können auch eine Struktur aus weiteren kleineren, jedoch vertikal ausgeprägten Maxima und Minima haben. Solche Profilstrukturen wurden beispielsweise in den Ozonsondenaufstiegen Anfang April 1994 und in den Lidarmessungen am 5. und 6. April 1994 über Ny-Ålesund beobachtet. Nach statistischen Untersuchungen von *Reid* und *Vaughan* (1991), (1992) finden sich diese Strukturen hauptsächlich in der unteren Stratosphäre im Bereich von 10 bis 18 km Höhe mit einem Maximum bei 14 km. Sie treten am häufigsten im Winter und Frühling in mittleren und polaren Breiten auf. Ihr Vorkommen nimmt zudem mit der geographischen Breite zu. Innerhalb des Polarwirbels wurden sie jedoch nur sehr selten beobachtet. Im Sommer werden fast keine strukturierten Ozonprofile beobachtet. Im Winter (Januar und Februar) liegt das Maximum der Häufigkeit des Auftretens von sekundären Ozonmaxima bei 400 K. Im Breitenbereich des Polarnacht-Jets zwischen 60° und 75° N ist ein zweites Maximum im 550 K Niveau zu finden. Im Frühjahr (März und April) verschiebt sich das Maximum zu sehr hohen Breiten (80° N) und liegt im Höhenbereich zwischen 400 K und 500 K. Südlich von 75° N ist wieder ein Band maximaler Häufigkeit um 400 K zu beobachten. Ursachen für Laminare vermuten *Reid* und *Vaughan* (1991)

in der horizontalen Advektion von Luftmassen aus unterschiedlichen geographischen Regionen mit unterschiedlichem Ozongehalt. Die Existenz des Polarwirbels scheint aufgrund des saisonalen Auftretens solcher Profile von Bedeutung zu sein.

Über Ny-Ålesund konnte diese Profilstruktur nach dem Aufbrechen des Polarwirbels beobachtet werden, aber auch den ganzen Sommer über. Im Winter wurde sie nur beobachtet, wenn der Polarwirbel vom Pol weg verschoben war und Spitzbergen außerhalb des Wirbels oder in seinem Randbereich lag, z. B. am 14. Februar 1994 (Abbildung 6.4).

6.4 Dynamische Effekte und ihr Einfluß auf das Ozonprofil

Reid und Vaughan (1992) vermuten in den ausgeprägten Strukturen der Ozonprofile das Abbild eines wichtigen Transportvorgangs von stratosphärischen Luftmassen in die Troposphäre. Aufgrund der Beobachtung, daß parallel zu den Beobachtungen von weiteren Maxima im Ozonprofil unterhalb der nominalen Grenze des Polarwirbels (400 K) hohe Ozonkonzentrationen zu finden sind, schließen *Reid und Vaughan* (1992), daß das Absinken stratosphärischer Luftmassen innerhalb des Polarwirbels und ihre anschließende horizontale Durchmischung mit Luftmassen aus mittleren Breiten entscheidend zur Transportrate von stratosphärischem Ozon in die Troposphäre beiträgt. Die Frage, welcher Mechanismus dieses Mischungsverhalten und die daraus resultierenden Strukturen in den Ozonprofilen hervorruft, läßt sich damit nicht beantworten.

6.4.1 Brechende planetare Wellen

Andere Untersuchungen zu Mischungsprozessen am Wirbelrand wurden von *Waugh et al.* (1994) durchgeführt. Die Autoren haben aufgrund von Flugzeug-gestützten Messungen von Spurengasen am Wirbelrand während der beiden Arctic Airborne Stratospheric Expeditionen (AASE 1 und 2) genauere Berechnungen der potentiellen Vorticity Felder vorgenommen. Die Konzentrationen der Spurengase ClO und N₂O am Wirbelrand wiesen keineswegs einen scharfen Gradienten auf, wie es gewöhnliche PV-Karten erwarten ließen. Sie zeigten ausgeprägte, kleinskalige Strukturen. Da diese Strukturen offensichtlich nicht in den PV-Karten aufgelöst werden, wurde der Transport von Spurengasen mit der 'contour advection with surgery trajectory technique' (CAS) berechnet. Diese Technik erlaubt eine Untersuchung des Transportes auf viel kleineren Skalen, als es mit den üblichen meteorologischen Analysen möglich ist. Dadurch kann eine wesentlich genauere Untersuchung der Wellenbrechung und der damit verbundenen Mischung von Spurengasen vorgenommen werden. Eine detaillierte Beschreibung der CAS Technik wird von *Waugh und Plumb* (1993) wiedergegeben. An dieser Stelle sei nur darauf hingewiesen, daß es sich um die Entwicklung von Konturen physikalischer Größen durch die Advektion von Partikeln mit interpolierten Windfeldern handelt. Im Zusammenhang mit der Entwicklung des Polarwirbels sind die Konturen der potentieller Vorticity von Interesse. Konturen, deren Auflösung kleiner als 8 km sind, werden in diesem Verfahren entfernt, womit eine untere Grenze der Größe der wie-

6. Ozonprofile während der Stratosphärenenerwärmung im Frühjahr 1994

dergegeben Strukturen gesetzt ist. Die PV-Karten vom ECMWF haben eine wesentlich gröbere Auflösung. Sie liegt mit $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ (Knudsen, 1992b) zwei Größenordnungen über der der CAS-Karten.

Die großräumige Struktur der CAS Berechnungen in der mittleren Stratosphäre stimmt gut mit PV-Karten überein (Abbildung 6.11). Sie zeigen jedoch zusätzlich einen feinstrukturierten Wirbelrand mit langen, fadenartigen PV-Konturen, die sich um den eigentlichen Wirbel herumwinden. Querschnitte der so berechneten potentiellen Vorticity am Wirbelrand korrelieren sehr gut mit den gemessenen Konzentrationen der Spurengase (Waugh et al., 1994; Plumb et al., 1994).

Die Autoren führen die in ihrem Modell beobachteten Strukturen der potentiellen Vorticity auf brechende Rossby-Wellen am Rand des Polarwirbels zurück. Das Konzept von brechenden Rossby-Wellen wurde von McIntyre und Palmer (1983) entwickelt. Sie berechneten erstmals PV-Karten mit einer Auflösung, die dieses Phänomen sichtbar machten. Obwohl diese PV-Karten immer noch relativ grobskali sind, werden neben dem Polarwirbel auch langgestreckte Zungen erhöhter potentieller Vorticity sichtbar, die sich bis in mittlere Breiten erstrecken. Die zeitliche Entwicklung dieser PV-Zungen läßt sie aus dem Wirbel herausgezogen und um ihn herumgewunden erscheinen (Abbildung 6.11). Die Konturen werden bei Prozessen dieser Art schnell und irreversibel verformt. Bei Wellenbewegungen mit kleiner Amplitude würden die Isoplethen der PV nur hin- und herbewegt. Aufgrund dieser Überlegungen beschreiben die Autoren den beobachteten Prozeß als 'Brechen planetarer Wellen', analog dem Brechen von Ozeanwellen an einem Strand. Sie vermuten, daß brechende Rossby-Wellen und ein damit verbundener isentroper Mischungsprozeß für das Erodieren des Polarwirbels verantwortlich ist und die den Polarwirbel umgebende gradientschwache Zone mit relativ einheitlichen PV-Werten erklärt werden kann, die sogenannte 'Brandungszone' des Polarwirbels (McIntyre und Palmer, 1984). Die Autoren räumen ein, daß es bisher keine in sich konsistente theoretische Formulierung für das Konzept der brechenden Wellen gibt. Es ist jedoch als heuristisches Konzept brauchbar, um zu versuchen, komplizierte Phänomene in der Dynamik zu verstehen (McIntyre und Palmer, 1985).

Waugh et al. (1994) konnten mit ihrem CAS-Modell zeigen, daß brechende Rossby-Wellen in der winterlichen Stratosphäre ein allgegenwärtiges Phänomen sind. Dabei werden Luftmassen aus dem Wirbel heraus transportiert oder lösen sich vom Wirbelrand in Form von feinen, fadenartigen Strukturen ab. Hier sehen die Autoren einen wesentlichen Unterschied zu brechenden Rossby-Wellen, wie sie McIntyre und Palmer (1983 und 1984) beschrieben haben. Letztere beziehen sich auf das 850 K Niveau, also die mittlere Stratosphäre. Dort wurden keine filigranen, sondern räumlich weiter ausgedehnte PV-Konturen beobachtet. Waugh et al. (1994) vermuten die Ursachen für diese Unterschiede in der unterschiedlichen Wirbelstruktur der beiden Niveaus, der Zunahme der Amplitude der sich aufwärts ausbreitenden Rossby-Wellen und in dem Einfluß von troposphärischen Störungen auf die untere Stratosphäre. Typischerweise entspricht die Menge der transportierten Luftmassen nur wenigen Prozent der Querschnittsfläche des Polarwirbels. Es traten während der AASE 2 Kampagne jedoch zwei 10-tägige Perioden mit starker Aktivität des Wellenbrechens auf, in denen Luftmassen aus 15% bzw. 31% der Wirbelquerschnittsfläche in mittlere Breiten transportiert wurden. Während der 3 Monate der AASE 2 Kampagne wurde ungefähr 50% der Gesamtfläche des Polarwirbels im 450 K Niveau nach außen transportiert.

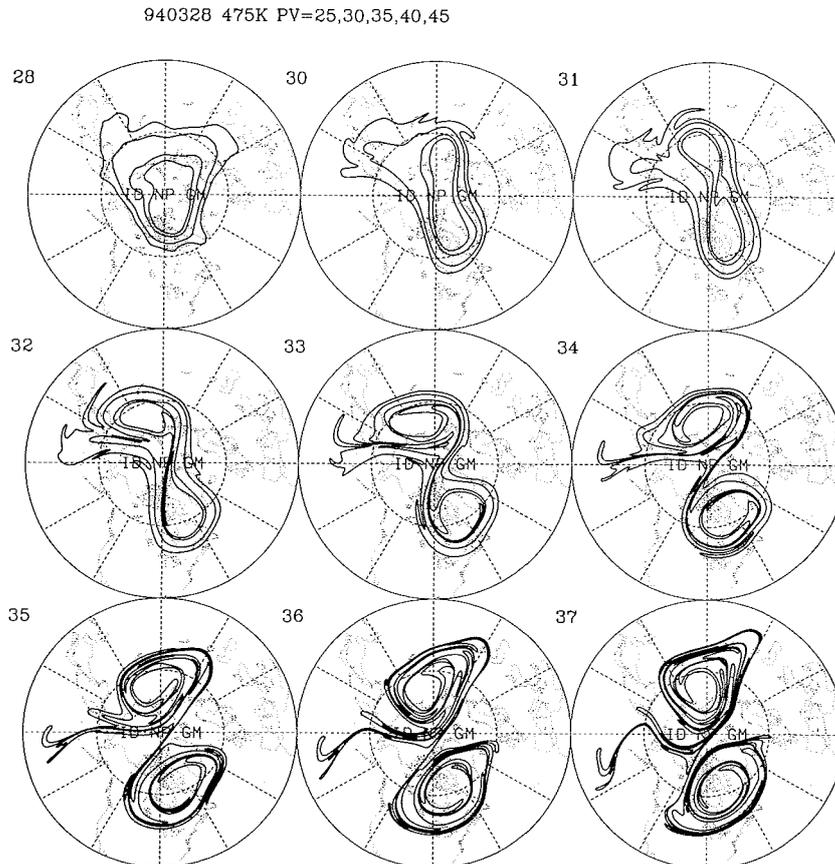


Abbildung 6.11 CAS-Berechnungen der Entwicklung der potentiellen Vorticity im 475 K Niveau, initialisiert am 28.3.94 mit dem horizontalen Windfeld vom National Meteorological Center (NMC), Washington (*Sobel* und *Plumb*, persönliche Mitteilung, 1995). Die Konturen entsprechen 15, 17.5, 20, 22.5 und 25 PVU. Die Abbildung oben links ist für den 28.03.1994, dann folgt (von links nach rechts und von oben nach unten) der 30.03., 31.03., 1.04., 2.04., 3.04., 4.04., 5.04. und 6.04.1994, jeweils 12:00 UTC.

Brechende Rossby-Wellen werden demnach nicht selten in der winterlichen Stratosphäre der Nordhemisphäre beobachtet. Sie leisten einen erheblichen Beitrag zum Transport von Ozon und anderen Spurengasen und Aerosolen aus dem Polarwirbel heraus. Dieser Umstand sollte bei der Betrachtung der Ozonabnahme in den mittleren Breiten bedacht werden, zumal der Polarwirbel der bisher einzig bekannte Ort ist, in dem die Luftmassen für einen starken chemischen Ozonabbau vorbereitet werden können.

6.4.2 Horizontale Ozontransporte durch brechende planetare Wellen

Es stellt sich im folgenden die Frage, inwiefern sich das Brechen von planetaren Wellen auf den Transport von Ozon in die Polargebiete auswirkt.

Die Transportrate von Ozon aus den mittleren Breiten in den Polarwirbel hinein ist unbekannt (*Plumb et al., 1994*), jedoch im Zusammenhang mit dem chemischem Ozonabbau innerhalb des Polarwirbels von großem Interesse. Die entscheidende Frage ist somit, inwieweit der Wirbel gegenüber den mittleren Breiten isoliert ist, bzw. wie hoch die Transportrate in den Wirbel hinein und aus ihm heraus ist. *Plumb et al. (1994)* haben für den Winter 1992 CAS-Berechnungen von PV-Feldern durchgeführt und die Strukturen des Polarwirbels mit flugzeuggetragenen Aerosol-Lidar Messungen der AASE 2 Kampagne verglichen. Sie konnten in der unteren Stratosphäre im Bereich von 425 K bis 500 K an einigen Tagen eindeutig Zonen aerosolreicher und aerosolarmer Luftmassen feststellen, die am Wirbelrand nebeneinander lagen. Ein hoher Aerosolgehalt ist charakteristisch für Luftmassen aus mittleren Breiten. In diesem Winter kam noch hinzu, daß die subpolaren Luftmassen große Mengen vulkanischen Aerosols enthielten, die vom Ausbruch des philippinischen Vulkans Pinatubo im Juni 1991 stammten. *Plumb et al. (1994)* interpretieren diese Beobachtungen dahingehend, daß Luftmassen von außerhalb in den Wirbel eindringen können. Im Winter 1992 wurden drei solcher Perioden beobachtet. Bei jedem dieser Ereignisse war der Polarwirbel in der unteren Stratosphäre durch einen Hochdruckrücken im Bereich des 0°-Meridians gestört. Die beobachteten Wirbelstrukturen ähneln denen eines Modells von *Waugh et al. (1994)* mit topographischer Anregung planetarer Wellen, die sich am Wirbelrand brechen. Typischerweise finden im Laufe eines nordhemisphärischen Winter ein bis drei solcher Ereignisse statt (*Plumb et al., 1994*). Bei jedem Ereignis werden ungefähr 5 % der Luftmassen des Wirbels von außerhalb in den Wirbel miteinbezogen. Diese Aerosolmessungen decken sich mit denen von *Beyerle (1994)*. Lidarmessungen des Rückstreuverhältnisses im Winter 1991/1992 über Ny-Ålesund zeigen einen erhöhten Aerosolgehalt in der unteren Stratosphäre bis 500 K im Dezember, Januar und Februar. Erst als der Polarwirbel Ende März aufbrach, konnte eine Erhöhung des Aerosolgehalts bis zum 600 K Niveau beobachtet werden. Die Beobachtungen lassen auf einen isolierten Wirbel oberhalb von 500 K und einen zeitweilig gestörten Wirbel unterhalb dieses Niveaus schließen (*Beyerle, 1994*).

Leovy et al. (1985) haben mit Hilfe von 'Limb Infrared Monitor of the Stratosphere' (LIMS) Satelliten-Messungen die Entwicklung und Verteilung des Ozon-Mischungsverhältnisses in der mittleren Stratosphäre untersucht und darin Strukturen gefunden, die sie auf den polwärtigen

Transport von Ozon durch planetare Wellen zurückführen. Dieser Transport geschieht in Form von schmalen Zungen ozonreicher Luftmassen, die sich am Wirbelrand entlang aus den Tropen und Subtropen bis in das Polargebiet erstrecken, wenn der Wirbel im Zusammenhang mit der Verstärkung der Wellenzahl 1 nach Süden verschoben wurde. Direkt neben einem starken Gradienten zwischen 40° und 50°N und dem 0° -Meridian und 90°O ist südlich davon eine gradientenschwache Zone zu sehen, die durch eine nach Osten weisende Zunge ozonreicher Luftmassen und etwas südlicher eine nach Westen weisende Zunge ozonarmer Luftmassen charakterisiert ist. Diese Beobachtung ist konsistent mit der Theorie der brechenden Rossby-Wellen und der Brandungszone außerhalb des Wirbels. Leovy et al. (1985) haben starke Ozongradienten, die sich nach Norden verschieben, nur in der mittleren Stratosphäre gesehen. Oberhalb von 3 hPa (35–40 km) wird die Ozonverteilung aufgrund der kurzen photochemischen Lebensdauer nicht durch den Transport dominiert. Unterhalb von 30 hPa (22–24 km) spielen die Ausläufer troposphärischer Wellen mit kleinen zonalen Wellenlängen eine größere Rolle.

6.4.3 Höhenabhängigkeit des Wellenbrechens

In Bezug auf die beobachteten Ozonprofile über Ny-Ålesund stellt sich die Frage, ob brechende Rossby-Wellen und damit verbunden eine horizontale Advektion von Luftmassen unterschiedlicher Herkunft mit unterschiedlichem Ozongehalt die Ursache für die sekundären Maxima bzw. die Minima in den Ozonprofilen im Bereich des Wirbelrandes bilden. Aus der Sicht der Messungen in Ny-Ålesund sind die Ozonprofile relativ glatt, solange der Polarwirbel mit seinem Kern über Spitzbergen liegt (Abbildungen 6.6, 6.8). Sobald sich der Wirbelrandbereich nähert, werden strukturiertere Profile beobachtet. Diese Strukturen in den Profilen treten nur in der Schicht zwischen 10 und 20 km auf. Darüber nimmt die Ozonteilchenzahldichte exponentiell ab, bzw. das Mischungsverhältnis bleibt nahezu konstant oder nimmt leicht zu. Es ist aber keine Struktur von kleineren Maxima und Minima zu beobachten. Diese Beobachtungen lassen vermuten, daß die Strukturen der Ozonprofile aufgrund des Transports von Ozon durch planetare Wellen synoptischer Größenordnung hervorgerufen wird, die sich bei ihrer vertikalen Ausbreitung in die Stratosphäre am Wirbelrand brechen. Eine mögliche Erklärung dafür wird im folgenden erläutert.

Die aus der Troposphäre aufwärts fortschreitenden Wellen sind in den PV-Karten im 315 K Niveau erkennbar (Abbildung 6.9). Die potentielle Vorticity ist in diesem Niveau ein Indikator für die Tropopausenhöhe. Die Tropopausenhöhe liegt in Gebieten zyklonaler Zirkulation tiefer, als in Gebieten mit antizyklonaler Zirkulation (Holten, 1979). Dadurch befindet sich das 315 K Niveau im Wirbelbereich noch innerhalb der Stratosphäre. In den umgebenden Luftmassen mit geringerer zyklonaler Zirkulation liegt das 315 K Niveau in der Troposphäre. Die Struktur der potentiellen Vorticity gibt demnach die räumliche Verteilung der synoptischen Wellen in diesem Niveau wieder. Es sind eine Vielzahl von kleineren Wirbeln und Zungen hoher potentieller Vorticity zu sehen, die sich bis in die mittleren Breiten erstrecken. Die Bewegung der synoptischen Wellen kann in den PV-Karten im 315 K Niveau verfolgt werden. Sie breiten sich mit dem Grundstrom nach Osten aus und sind selten stationär.

Tabelle 6.1 Maximale zonale Windgeschwindigkeiten \bar{u} , bei der Wellen der sphärischen Wellenzahl $s = ka \cos \phi$ dissipieren.

s	\bar{u} (m/s)
1	< 28
2	< 16
3	< 9.1
4	< 5.8
5	< 3.9
6	< 2.8

Wellen mit einer Wellenzahlen größer 2 dissipieren in der unteren Stratosphäre, wenn die zonale Windgeschwindigkeit einen Grenzwert von 16 m s^{-1} überschreitet. Die Grenzwerte für die Wellenzahlen 1 bis 6 sind in Tabelle 6.1 für 60° Breite wiedergegeben. Die sphärische zonale Wellenzahl s ist eine Funktion der geographischen Breite, $s = ka \cos \phi$, wobei k die zonale Wellenzahl in kartesischen Koordinaten und a der mittlere Erdradius ist. Je weiter nach Norden sich die Wellen ausbreiten, desto geringer muß ihre Wellenzahl werden. Der Bereich, in dem über Ny-Ålesund Strukturen in den Ozonprofile beobachtet werden, ist gerade der Bereich zwischen 10 und 20 km, in dem die Rossby-Wellen synoptischer Größenordnung dissipieren.

Mit diesen planetaren Wellen wird sehr effektiv Ozon ins Nordpolargebiet transportiert (Leovy et al., 1985). Die Frage ist, was mit dem Ozon geschieht, wenn diese Wellen dissipieren. Das hängt davon ab, auf welche Art planetare Wellen dissipieren. Wenn sich die Welle ungehindert nach oben ausbreiten kann, wird ihre Amplitude mit zunehmender Höhe bzw. zunehmender Windgeschwindigkeit abklingen und das von ihr mitgeführte Ozon wird nicht mehr weitertransportiert. Es verbleibt in dem Niveau und unterliegt der mittleren Strömung. Dabei gibt es keinen Grund, daß ein vertikaler Ozongradient aufgebaut wird. Die Wellen klingen relativ langsam ab, nicht abrupt.

Planetare Wellen synoptischer Größenordnung können bei ihrer Ausbreitung nach oben brechen, wenn ihrer Amplitude nicht mehr genügend Raum gegeben ist. Dieses kann an einer Grenzfläche oder an einem Starkwindband passieren. In dem betrachteten Höhenbereich kommt zum einen die Tropopause als solch eine Grenzfläche in Frage, da sich an ihr die Stabilität der Luftmassen ändert. Wenn die Tropopause eine solche Barriere für synoptische Wellen wäre, müssten jedoch alle Wellen direkt oberhalb der Tropopause verschwinden. Das entspricht nicht den Beobachtungen.

Die Auslenkung der planetaren Wellen und damit ihre Amplitude ist aufgrund der Anregung durch den meridionalen Gradienten planetarer Vorticity horizontal ausgerichtet. Brechen diese Wellen bei ihrer vertikalen Ausbreitung an einem Starkwindband, wie es am Rande des Polarwirbels zu finden ist, in Abhängigkeit von ihrer Wellenzahl und der im Starkwindband angetroffenen

Windgeschwindigkeit, wird das in schmalen Zungen mitgeführte Ozon schichtweise übereinander deponiert. Das Brechen der Wellen erfolgt in horizontaler Richtung, die Höhe in der sie brechen, hängt jedoch von ihrer Wellenzahl ab. Bei solch einer 'Dissipation' kommt es in dem betroffenen Höhenbereichen der Wellenbrechung zu einer abrupten Ende der Wellenbewegung und das Ozon verbleibt vorerst in diesem Niveau. Dadurch kann es zu der Ausbildung von sekundären Maxima in der unteren Stratosphäre kommen. In die mittlere bis obere Atmosphäre können diese Wellen nicht gelangen.

Die Lidarmessungen des Ozonmaximums vom 5. und 6. April 1994 (Abbildung 6.7) lassen sich mit diesem Konzept erklären. Sie zeigen, daß sich das sekundäre Maximum in ca. 11 km Höhe aus den darunterliegenden Schichten nach oben ausbreitet. Dabei entwickelt es zeitweilig noch kleinere Strukturen. Die Profile am Abend des 6. März zeigen kein Maximum in der unteren Stratosphäre mehr. Die Zeitskala dieser Entwicklung beläuft sich demnach auf Stunden bis zu einem Tag, was vergleichbar mit der Größenordnung des Durchzugs von synoptischen Wellen an einem Ort ist

Dieses Konzept kann als Erklärungsversuch der Beobachtungen von Strukturen kurzlebiger Minima und Maxima in der unteren Stratosphäre im Bereich des Polarwirbelrandes dienen.

6.4.4 CAS-Berechnungen

CAS-Berechnungen der PV-Felder von *Plumb* (persönliche Mitteilung, 1995) in mehreren isentropen Niveaus zeigen unterschiedliches Verhalten. In einigen Fällen sind die filigranen PV-Strukturen am Wirbelrand vertikal kohärent und in andere Fällen liegen sie sehr schräg übereinander.

A. *Sobel* von Massachusetts Institute of Technology in Cambridge, Arbeitsgruppe von *Plumb*, hat freundlicherweise CAS-Berechnungen in mehreren isentropen Niveaus für den Zeitraum 28. März bis 6. April 1994 durchgeführt. Sie starten mit der PV-Karte vom 28. März und die Advektion der potentiellen Vorticity mit dem Windfeld wurde für jeden Tag bis zum 6. April berechnet. Es liegen jeweils 9 Plots in 6 isentropen Niveaus von 350 K bis 475 K vor. Ein Beispiel wird in Abbildung 6.11 vorgestellt. Es handelt sich bei den CAS-Berechnungen nicht um ein Modell. Die potentielle Vorticity und das Windfeld stammen nur aus Beobachtungen, es wurden keine Daten assimiliert. Diese Plots können eine Grundlage für eine detaillierte Untersuchung der Strukturentwicklung in Ozonprofilen durch höhenabhängiges Wellenbrechen bieten. Ein weiteres Beispiel für ein tieferliegendes Niveau ist in Abbildung 6.12 dargestellt. Die fadenartigen Strukturen nehmen in den unteren Niveaus zu. Das liegt in diesem Fall mit daran, daß keine 'surgery' angewendet wurde, also auch Strukturen kleiner als 8 km aufgelöst werden. Eine Analyse der Ozonprofilstrukturen mit Hilfe der CAS-Methode könnte zur Verifizierung des in dieser Arbeit entwickelten Konzepts dienen.

6. Ozonprofile während der Stratosphärenwärmung im Frühjahr 1994

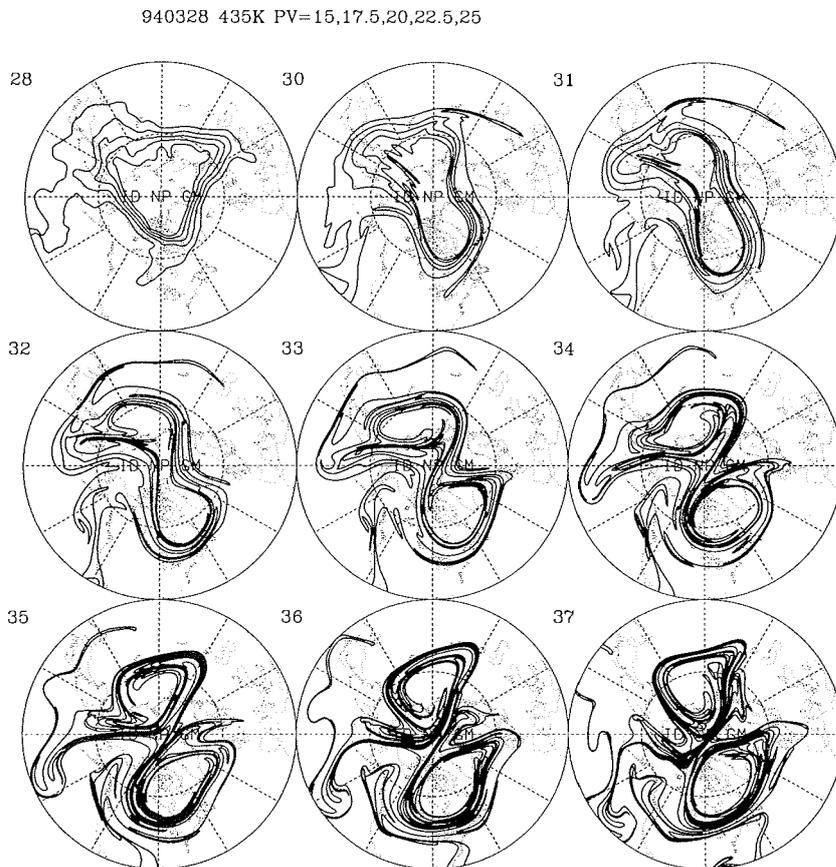


Abbildung 6.12 CAS-Berechnungen der Entwicklung der potentiellen Vorticity im 435 K Niveau, initialisiert am 28.3.94 mit dem horizontalen Windfeld vom National Meteorological Center (NMC), Washington (*Sobel* und *Plumb*, persönliche Mitteilung, 1995). Die Konturen entsprechen 15, 17.5, 20, 22.5 und 25 PVU. Die Abbildung oben links ist für den 28.03.1994, dann folgt (von links nach rechts und von oben nach unten) der 30.03., 31.03., 1.04., 2.04., 3.04., 4.04., 5.04. und 6.04.1994, jeweils 12:00 UTC.

7. Ozonverluste im arktischen Polarwirbel im Winter 1994/95

Der im Kapitel 2.2.3 beschriebene katalytische Ozonabbau in der winterlichen Stratosphäre wird in dieser Form vor allem im antarktischen Polarwirbel beobachtet. In der Arktis sind die notwendigen Voraussetzungen für die Bildung eines umfangreichen Ozonabbaus nicht im gleichen Maße gegeben. Die mittleren Temperaturen innerhalb des arktischen Polarwirbels sind grundsätzlich wesentlich höher als die mittleren Temperaturen in der Antarktis zur gleichen Jahreszeit. Deshalb können sich PSCs über der Arktis seltener bilden, und sie treten nur lokal auf (*Brune et al., 1991*). In der Vergangenheit wurden keine PSCs vom Typ II beobachtet. Neuere Lidar-Messungen des Aerosolgehalts über Andøya, Norwegen, (*Schäfer et al., 1994*) im Winter 1994/95 zeigten zwei kurzzeitige Situationen sehr hohen Rückstreuverhältnisses (*Müller et al., 1995*). Ob es sich in diesen Fällen um PSCs vom Typ II gehandelt hat, muß die weitere Auswertung zeigen. In der Antarktis ist fast die gesamte Fläche des Wirbels mit PSCs beider Typen überdeckt. Ein weiterer Unterschied ist die räumliche Ausdehnung des Polarwirbels. Der arktische ist kleiner, weniger symmetrisch und instabiler. Der Grund dafür liegt in der unterschiedlichen Bodentopographie. Über dem großen, fast kreisrunden Eisschild der Antarktis kann sich ein sehr stabiler Wirbel ausbilden. Auf der Nordhalbkugel reichen die Landmassen bis nahe an den arktischen Ozean heran. Sie verursachen deutliche Störungen der atmosphärischen Zirkulation, die den Polarwirbel im Laufe des Winters immer wieder zu niederen Breiten verschieben oder ihn aufzuspalten vermögen (siehe Abschnitt 3.2). Damit können warme Luftmassen aus mittleren Breiten in das Nordpolargebiet vordringen, sich teilweise mit den Luftmassen des Wirbels vermischen und somit die Bildung von PSCs verhindern.

7.1 Die Entwicklung des Polarwirbels im Winter 1994/95

Der arktische Polarwirbel begann sich im Winter 1994/95 bereits Ende August/Anfang September zu entwickeln. Das ist im Vergleich zum klimatologischen Mittel sehr früh. Im Laufe des Septembers verstärkte sich die zyklonale Zirkulation und die Temperaturen in der Polarregion sanken unter -60°C in 30 hPa. Im Oktober verstärkte sich der Polarwirbel weiter, die Temperaturen sanken auf Werte um die -70°C ab. Temperaturen nahe -80°C wurden erstmals am

7. November erreicht. Das Zentrum des Wirbels lag zu diesem Zeitpunkt über der Sibirischen Arktis, das Kältezentrum jedoch nahe Spitzbergen. Der Polarwirbel verlagerte sich Ende November in Richtung Kanada und blieb dort bis Mitte Dezember (zu der im folgenden beschriebenen zeitlichen Entwicklung des Polarwirbels siehe Abbildung 7.1). Die Temperaturen sanken unter -80°C . Am 12. Dezember wurden erstmals -85°C in der unteren Stratosphäre gemessen, nachdem sich das Kältezentrum in die Europäische Arktis verlagert hatte. Über Spitzbergen lagen die Temperaturen 10 K unterhalb der normalen Temperaturen zu dieser Jahreszeit. Das Wirbelzentrum verlagerte sich Mitte Dezember von der Kanadischen Arktis zur Sibirischen Arktis. Der Wirbel war außerordentlich stabil und das Temperaturminimum lag mit -87°C Ende Dezember über Novaja Semlja. Im Januar erstreckt sich die Kaltluft über die Europäische und Sibirische Arktis, Grönland, Nordskandinavien und Sibirien. Bei Spitzbergen sanken die Temperaturen auf Werte um -86°C ab, im Zentrum der Kaltluft zwischen Spitzbergen und Kiruna sogar auf -88°C . Am 17. Januar begann sich der Wirbel aufgrund der Verstärkung der planetaren Welle der Wellenzahl 2 zu spalten. Zwei neue, ausgeprägte Wirbelzentren entstanden, eines über der Karasee und das zweite über Island. Die Temperaturen in der Polarregion stiegen beträchtlich an, bis zu 20 K über Spitzbergen. Die Stratosphärenenerwärmung setzte sich zu niedrigeren Höhen durch und das Warmluftzentrum wanderte ostwärts. Über Nordgrönland stiegen die Temperaturen in 30 hPa auf -25°C an. Der Polarwirbel über Asien blieb stabil und die Temperaturen im Kaltluftzentrum lagen weiterhin unterhalb von -80°C . Anfang Februar begann sich die Erwärmung abzuschwächen. Auch die Temperaturen im Kaltluftzentrum stiegen langsam auf -75°C an. Das Wirbelzentrum verlagerte sich Mitte Februar nach Westen in Richtung Spitzbergen. Das Kaltluftzentrum über Asien verschwand und ein neues bildete sich über Nordeuropa mit Tiefsttemperaturen bis -79°C in 30 hPa. Der Wirbel blieb zunächst mit seinem Zentrum über Spitzbergen liegen, wanderte dann jedoch wieder in die Sibirische Arktis und Ende Februar zurück in die Europäische Arktis. Anfang März begann sich der Wirbel und auch das Kaltluftzentrum in die Kanadische Arktis zu verlagern. Die Temperaturen sanken wieder auf -80°C ab. Danach wanderte der Wirbel und das Kaltluftzentrum in die Sibirische Arktis, wo der Wirbel sich Mitte März zu spalten begann. Das Hauptzentrum mit der Kaltluft verlagerte sich nach Nordeuropa, das andere, kleinere nach Sibirien, wo es sich bald auflöste. Bis Ende März blieb der Wirbel stabil, spaltete sich nochmal am 29. März und ein letztes Mal in der ersten Aprilwoche. Im Laufe des April löste er sich dann langsam auf und warme Luftmassen setzten sich Ende April bis zum Pol hin durch (Naujokat, 1995).

7.1.1 Temperaturentwicklung über Ny-Ålesund

In Abbildung 7.2 ist der Temperaturverlauf von Oktober 1994 bis Ende April 1995 über Ny-Ålesund dargestellt. Die Stratosphäre begann sich im Oktober in 20–30 km Höhe auf Temperaturen unterhalb von -60°C abzukühlen. Im November sanken die Temperaturen dann unter -70°C und die Abkühlung setzte sich zu niedrigeren Höhen durch. Nach einer kurzzeitigen, schwachen Erwärmung Ende des Monats erfolgte im Dezember eine rasche Abkühlung auf Temperaturen unterhalb von -80°C . Am 11. Dezember erreichten sie erstmals die Koexistenztemperatur von

7.1 Die Entwicklung des Polarwirbels im Winter 1994/95

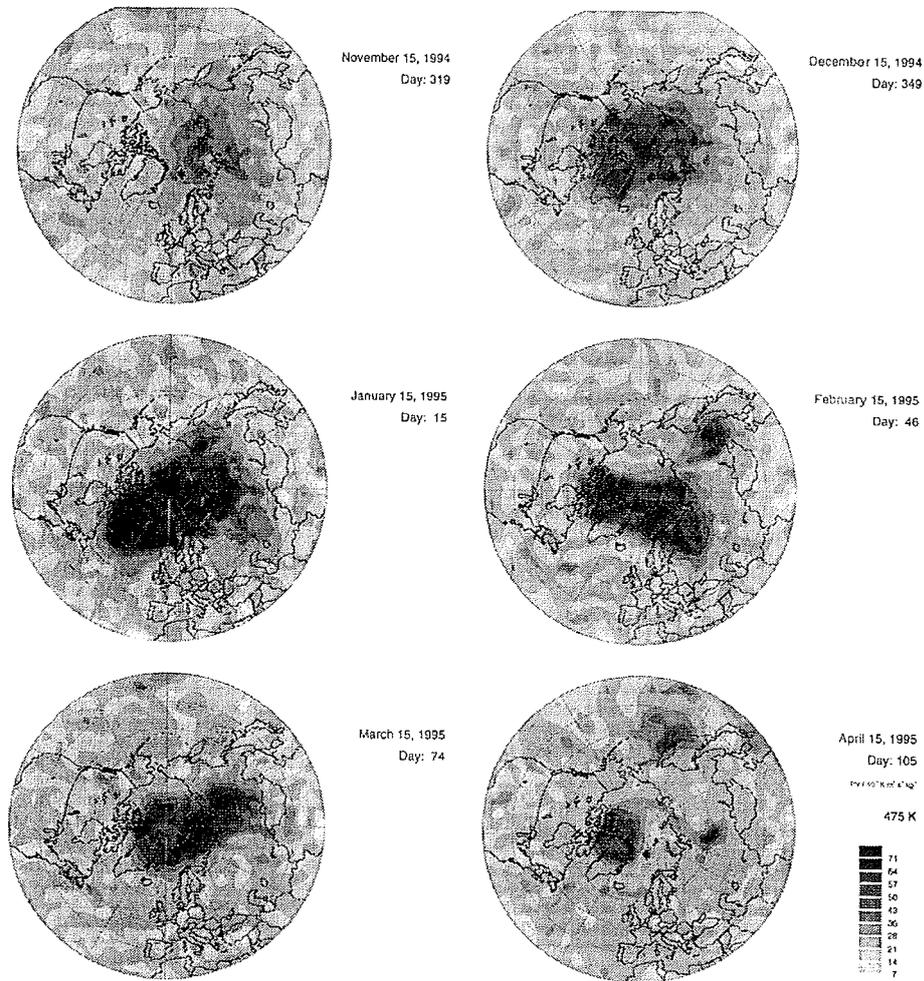


Abbildung 7.1 Konturenplots potentieller Vorticity im 475 K Niveau am 15. Tag jeden Monats im Winter 1994/95.

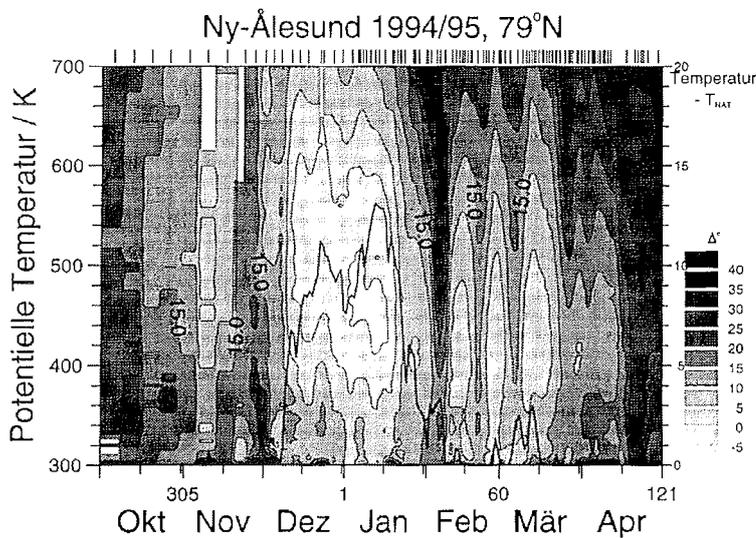


Abbildung 7.2 Konturenplot der Koexistenztemperatur von NAT bei einer Konzentration von 5 ppbv HNO_3 und 5 ppmv HN_2O über Ny-Ålesund vom Oktober 1994 bis April 1995, berechnet aus Ozonsondenaufstiegen. Die dickere Linie gibt die Fläche (in 10^6 km^2 , Skala am rechten Rand) innerhalb des Polarwirbels mit Temperaturen unterhalb der Koexistenztemperatur für NAT an.

NAT, wenn eine Konzentration von 5 ppbv Salpetersäure und 5 ppmv Wasserdampf vorausgesetzt wird.

Mitte Dezember hat sich die Atmosphäre in der Schicht zwischen dem 400 K und 600 K Niveaus so stark abgekühlt, daß die Lufttemperatur unter die Koexistenztemperatur von NAT fiel. Anfang Januar kühlte diese Schicht noch weiter ab, teilweise bis an die Grenze der Temperatur, bei der Eisteilchen bei einem Mischungsverhältnis von 5 ppmv Wasserdampf ausfrieren und PSCs vom Typ II entstehen könnten. Die untere Grenze dieser Schicht sank dabei langsam nach unten in das 380 K Niveau. Diese Temperaturverhältnisse blieben bis zum 18. Januar 1995 bestehen. Danach begann sich die Stratosphäre langsam zu erwärmen. Anfang Februar ereignete sich eine, wenige Tage andauernde, starke Erwärmung, die mit einer Verlagerung des Polarwirbels zum asiatischen Kontinent hin zusammenhing. Am 13. Februar 1995 kühlte die Stratosphäre erneut ab. Die Temperaturen blieben bis Ende März sehr niedrig. Sie sanken jedoch nicht mehr unter die Koexistenztemperatur von NAT. Ende März begann die Frühjahrserwärmung der Stratosphäre über Ny-Ålesund und im April setzten sich sommerliche Temperaturen um die -40°C durch.

7.1.2 Lidarmessungen polarer Stratosphärenwolken

In dieser für die Arktis ungewöhnlich langen Periode mit Temperaturen unterhalb der Koexistenztemperatur von NAT ist die Bildung von PSCs vom Typ I zu erwarten. PSCs verursachen eine Erhöhung des Rückstreusignals. Die Rückstreuung ist unter den verwendeten Wellenlängen bei den langwelligen (353 nm und 532 nm) am stärksten. Ein Beispiel eines solchen erhöhten Lidarsignals vom 28. Februar 1994 ist in Abbildung 7.3 dargestellt. Dieses Beispiel demonstriert neben der beobachteten PSC die Güte der Raman-Kanäle. Die Strukturen in 8 bis 10 km Höhe wurden von Cirruswolken verursacht. Eine Aussage über die Intensität einer PSC wird aus dem Rückstreuverhältnis $R(\lambda)$ bestimmt. Es beschreibt das Verhältnis der gesamten Rückstreuung durch die Moleküle und Partikel in der Atmosphäre zu der reinen Molekül-Rückstreuung.

$$R(\lambda) = \frac{\beta_{\text{Ray}}(\lambda) + \beta_{\text{Mie}}(\lambda)}{\beta_{\text{Ray}}(\lambda)} \quad (7.1)$$

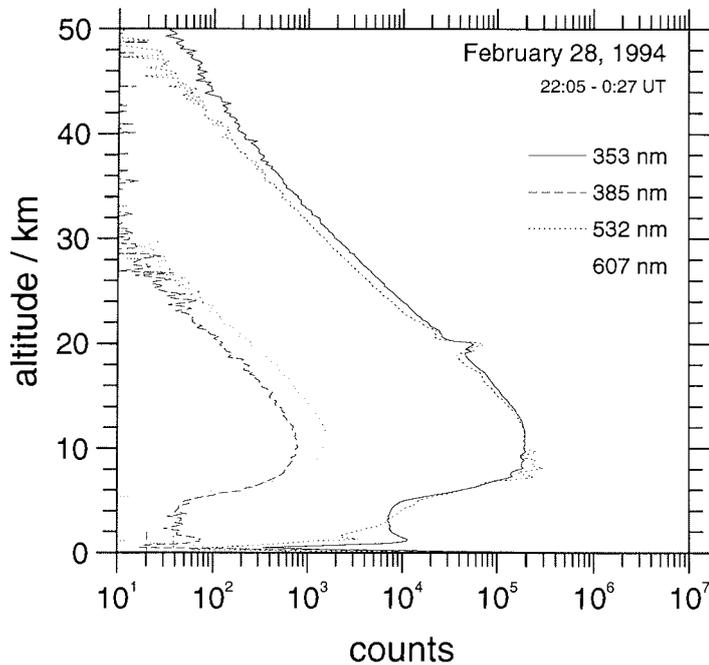
Für eine von Aerosolen unbelastete Atmosphäre ist das Rückstreuverhältnis gleich eins.

Im Zeitraum vom 9. bis 17. Januar 1995 wurden mit dem Ozon- und Aerosol-Lidar über Spitzbergen stark erhöhte Rückstreuverhältnisse gemessen. Sie lagen im Bereich von 16–23 km Höhe bei Werten bis zu 5. In Abbildung 7.4 ist das Rückstreuverhältnis am 9. Januar im Vergleich zu der PSC-Messung im Winter 1993/94 am 28. Februar 1994. Die beiden PSCs unterscheiden sich deutlich in ihrer vertikalen Ausdehnung, in der Höhe ihres Rückstreuverhältnisses und damit ihrer optischen Dicke. Die optische Dicke der PSCs im Januar 1995 war wesentlich höher.

Im Januar 1993 wurden mit dem damaligen Aerosol-Lidar über Ny-Ålesund PSCs mit Rückstreuverhältnissen von etwas höher als 3 beobachtet (Beyerle, 1994). Im Winter 1994/95 sind die Rückstreuverhältnisse somit höher als jemals zuvor seit Beginn der Aerosol-Lidar-Messungen im November 1991.

Seit dem Winter 1993/94 betreiben japanische Wissenschaftler ein weiteres Aerosol-Lidar in Ny-Ålesund. Sie konnten schon ab dem 14. Dezember PSCs über Spitzbergen beobachten (Susumu, persönliche Mitteilung, 1995). Über Ny-Ålesund wurden am Anfang und am Ende des Zeitraums der tiefen stratosphärischen Temperaturen jeweils ca. eine Woche lang PSCs beobachtet. Es kann davon ausgegangen werden, daß sie auch in den zwei dazwischenliegenden Wochen existierten, da sich die Stratosphäre im Höhenbereich der PSCs sogar noch etwas abgekühlt hat. Von Mitte Dezember bis Mitte Januar waren in der mittleren Stratosphäre über Ny-Ålesund PSCs vorhanden. Über einen Zeitraum von dieser Länge treten PSCs zum ersten Mal in Ny-Ålesund auf. Die hohe optische Dicke und vertikale Ausdehnung der PSCs sowie die lange Zeit ihres Auftretens bieten gute Bedingungen, daß heterogene Reaktionen an ihren Oberflächen ablaufen.

Ozone LIDAR Ny-Ålesund/Spitsbergen (79° N,12° E)



summed data

raw data (compr.): 94022822.05M

	353 nm	385 nm	532 nm	607 nm
height of maximum:	9.70	10.10	8.10	11.10 km
max. count rate:	5.25	0.02	7.93	0.04 cts/km/p.
signal (15 km):	3.10	0.01	2.77	0.02 cts/km/p.
background:	0.00	0.00	0.00	0.00 cts/km/p.
number of pulses:	190000	190000	190000	190000

Abbildung 7.3 Lidar-Rohdaten Signale vom 28.02.1994. In 20 km Höhe ist eine Erhöhung des Rückstreusignals der Wellenlänge 532 nm und 353 nm zu sehen, daß von einer PSC verursacht wurde. Die Raman-Kanäle bleiben davon unbeeinflusst.

Polare Stratosphärenwolken
Ny-Ålesund (79°N)

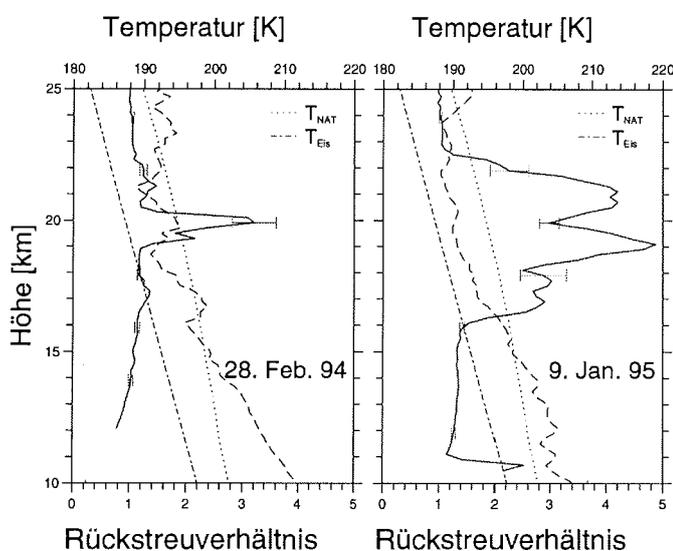


Abbildung 7.4 Höhenprofile des Rückstreuverhältnis (durchgezogene Linie) berechnet aus den Aerosol-Lidarmessungen im Kanal 353 nm am 28.2.1994 und im Kanal 532 nm am 9.1.1995 in Ny-Ålesund, Die gestrichelte Linie gibt den aktuellen Verlauf der Temperatur wieder. Zur Orientierung sind auch die Koexistenztemperaturen für NAT und Eis angegeben. (Stebel, persönliche Mitteilung, 1995).

7.1.3 Ozonmessungen über Ny-Ålesund

Im Winter 1994/95 wurden ab Ende November im Rahmen der SESAME-Kampagne und des Match-Experiments an der Koldewey-Station mehrere Ozonsondenaufstiege pro Woche durchgeführt. Während besonders interessanter Phasen wurden sogar täglich eine, manchmal auch zwei Ozonsonden gestartet. Von Januar bis einschließlich April liegen pro Monat an über 20 Tagen Ozonprofile vor. Dadurch konnte im Verlaufe dieses interessanten Winters eine sehr hohe Datendichte erreicht werden. Die Ozonsäulendichten (Abbildung 7.5) liegen über Ny-Ålesund im Laufe des Dezembers und Januars um die 300 DU und damit ca. 15 % unterhalb des Mittelwertes der Messungen in diesem Zeitraum seit 1990. Ende Januar beginnen die Säulendichten innerhalb weniger Tage anzusteigen. Anfang Februar 1995 wurde ein Wert von 412 DU gemes-

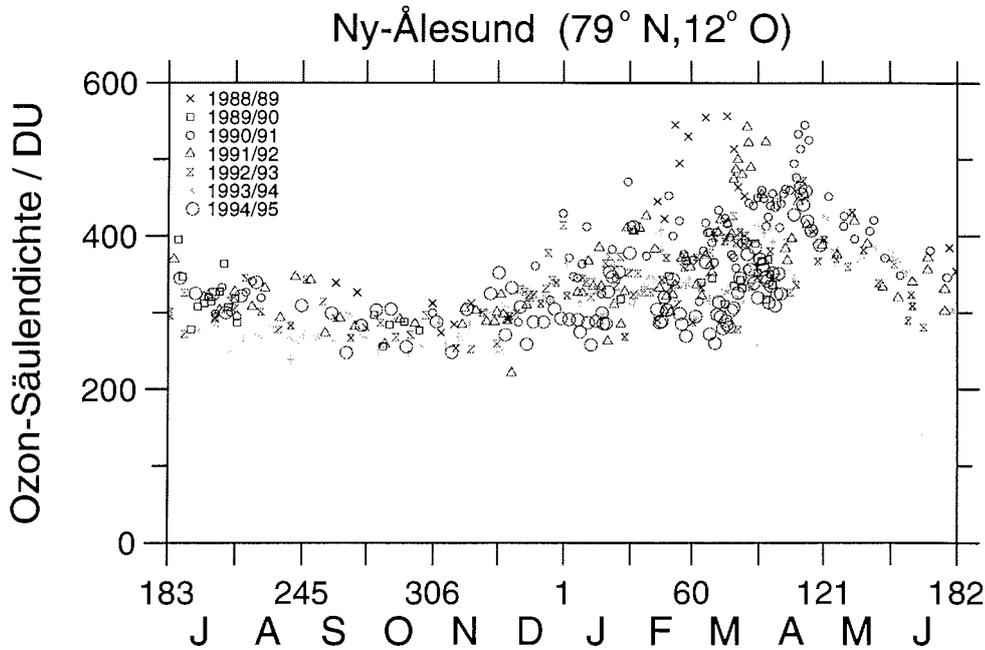


Abbildung 7.5 Ozonsäulendichte in Dobsen-Einheiten berechnet aus den Ozonsondenaufstiegen in Ny-Ålesund. Die Symbole repräsentieren jeweils eine einjährige Periode vom Juli eines Jahres bis zum Juni des darauf folgenden Jahres.

sen. Zu diesem Zeitpunkt lag Ny-Ålesund für einige Tage außerhalb des Polarwirbels. Über der Station lagen die Werte der potentiellen Vorticity im 475 K Niveau vom 5. bis 8. Februar 1995 nur wenig oberhalb von 30 PVU. Damit konnten ozonreiche Luftmassen aus mittleren Breiten bis nach Spitzbergen vordringen. Mitte Februar sinken die Ozonwerte wieder auf 300 DU und bleiben bis auf wenige Ausnahmen bis Ende März niedrig. Danach erfolgt ein erneuter Anstieg auf Werte zwischen 300 DU und 400 DU. Im Vergleich zu den Jahren zuvor liegen die Ozonwerte aber immer noch an der unteren Grenze der zu dieser Jahreszeit üblichen Meßwerte. Erst Mitte April steigen die Ozonwerte auf über 400 DU bis maximal 463 DU am 20. April 1995 an und nehmen dann gegen Ende April und im Mai langsam ab. Damit liegen sie wieder im Bereich der Ozonsäulendichten der Vorjahre. Von Dezember bis Mitte April war in diesem Winter der Ozongehalt im Polarwirbel so niedrig wie nie zuvor seit Beginn der Ozonbeobachtungen an der Koldewey-Station.

Ny-Ålesund/Spitsbergen (79° N, 12° E)

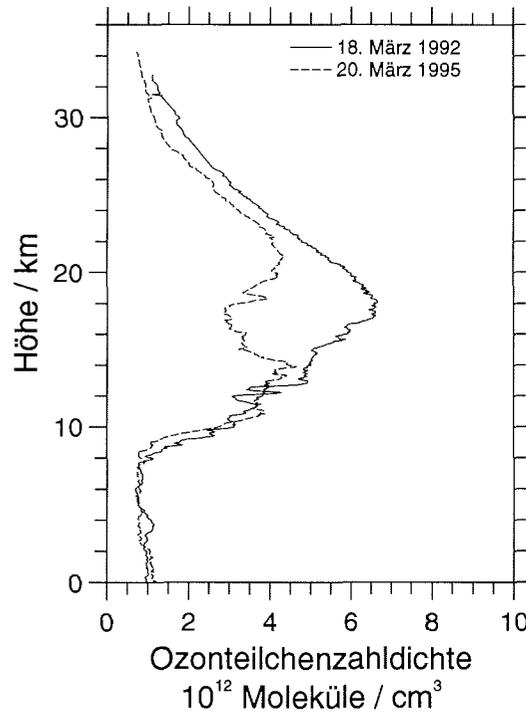


Abbildung 7.6 Ozonsondenprofile über Ny-Ålesund vom 18.03.1992 und 20.03.1995. Der Ozonabbau im März 1995 fand primär in der Schicht von 14 bis 20 km Höhe statt.

7.2 Ozonabbau

In der Struktur der Ozonprofile läßt sich zum ersten Mal am 13. Februar 1995 ein deutliches Minimum in der Ozonteilchendichte im Bereich von 20 km Höhe feststellen. Solche Minima sind in fast allen Profilen bis Ende März zu finden, sofern die Ozonsonde genügend hoch geflogen ist. Ein Vergleich des Sondenaufstiegs vom 20. März 1995 mit einem Aufstieg vom 18. März 1992, der in Abbildung 7.6 dargestellt ist, macht den Ozonverlust in der Schicht von 14 bis 22 km deutlich. An beiden Tagen lag Ny-Ålesund innerhalb des Polarwirbels. Dieses Ozonminimum hat keine dynamische Ursache, sondern ist das Resultat von chemischem Ozonabbau, wie im

folgenden gezeigt wird.

Um dynamische Einflüsse durch Vertikalbewegungen in erster Näherung auszuschließen, muß das Ozonmischungsverhältnis auf isentropen Flächen betrachtet werden. Das Mischungsverhältnis und die potentielle Temperatur sind für adiabatische Bewegungen konservative Größen (siehe Kapitel 3.1). Im Laufe des Winters findet jedoch eine strahlungsbedingte diabatische Abkühlung der Luftmassen innerhalb des Polarwirbels statt. Dies hat ein langsames Absinken der Luftmassen über die isentropen Flächen hinweg zur Folge. Unter Ausschluss chemischer Prozesse bewirkt dieses Absinken einen Anstieg des Ozonmischungsverhältnisses in einem festen isentropen Niveau, da ein hohes Ozonmischungsverhältnis von oben heran transportiert wird. Diese dynamisch bedingte Zunahme muß bei der Berechnung von chemischem Ozonabbau berücksichtigt werden:

$$D(O_3) = \frac{\partial\{O_3\}(\theta_0, t)}{\partial t} + \frac{\partial\{O_3\}}{\partial \theta} \cdot \frac{\partial \theta}{\partial t} \quad (7.2)$$

$D(O_3)$ ist die Ozonabbaurate, $\{O_3\}$ das Ozonmischungsverhältnis und θ die potentielle Temperatur. Der erste Summand beschreibt die zeitliche Änderung des Ozonmischungsverhältnisses auf einem festen isentropen Niveau. Der zweite Summand setzt sich aus dem vertikalen Gradienten des Ozonmischungsverhältnisses und der Abkühlungsrate zusammen.

7.2.1 Änderung des Ozonmischungsverhältnisses in festen isentropen Niveaus

In diesem Abschnitt wird der erste Summand der obigen Gleichung aus den Ozonsondenmessungen bestimmt.

Ein Konturenplot (Abbildung 7.7) des zeitlichen Verlaufs des Mischungsverhältnisses auf isentropen Flächen verdeutlicht den Höhenbereich des Ozonabbaus. Die obere Grenze der Abnahme des Mischungsverhältnisses verlagerte sich seit Beginn des Jahres 1995 von 550 K zu 475 K Ende März. Die untere Grenze liegt bei 400 K.

Abbildung 7.8 zeigt das relative Ozonmischungsverhältnis in fünf isentropen Niveaus in der unteren und mittleren Stratosphäre normiert auf den Mittelwert aus sechs Ozonsondenaufstiegen Anfang Januar 1995.

Für die folgenden Berechnungen wurden nur Ozonsondenaufstiege von Tagen verwendet, an denen die potentielle Vorticity im 475 K Niveau über Ny-Ålesund mindestens 42 PVU betrug, die Messungen also im Kernbereich des Wirbels stattfanden. Würden auch jene Ozonsondenaufstiege verwendet, die im Randbereich des Wirbels bei einer potentiellen Vorticity von mindestens 36 PVU lagen, kämen nur wenige Ozonprofile zu Beginn der betrachteten Periode und während kurzzeitiger Erwärmungen oder Verschiebungen des Polarwirbels hinzu. Da im Wirbelrandbereich diabatische Mischungsprozesse vorkommen können, wurden diese Ozonsondenaufstiege nicht berücksichtigt. Die zeitlichen Änderungen des Ozonmischungsverhältnisses wurden auf

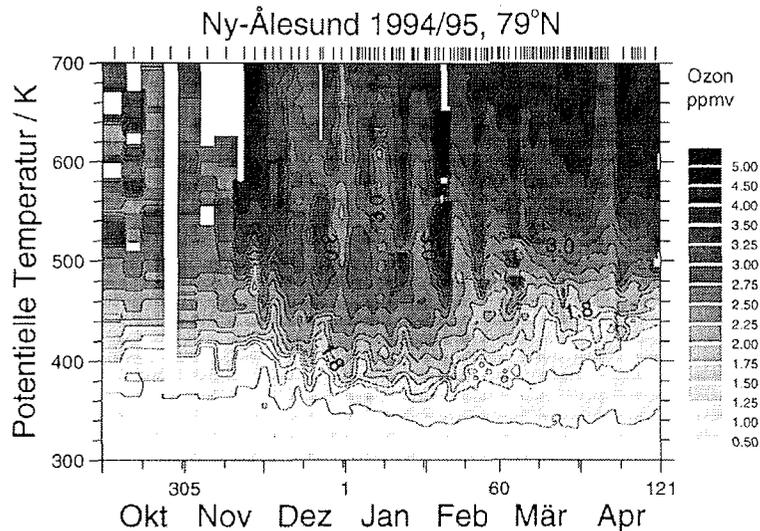


Abbildung 7.7 Konturenplot des Ozonmischungsverhältnisses berechnet aus den Ozonsondenaufstiegen über Ny-Ålesund im Winter 1994/95. Die vertikalen Striche oberhalb der Abbildung markieren die Zeitpunkte der Ozonsondenaufstiege.

fünf isentropen Niveaus für verschiedene Zeiträume durch lineare Regression bestimmt (Abbildung 7.9). In Tabelle 7.1 werden die prozentualen täglichen Änderungen wiedergegeben. Die angegebenen Fehler sind die einfachen Standardabweichungen.

7.2.2 Einfluß der diabatischen Abkühlung

In diesem Abschnitt wird die Größe des zweiten Summanden der Gleichung (7.2) abgeschätzt.

Der mittlere vertikale Gradienten der Ozonmischungsverhältnisse in den betrachteten isentropen Niveaus wurde mit Hilfe einer abschnittswisen quadratischen Regression aus den Monatsmitteln des Ozonmischungsverhältnisses für die Monate Januar bis April 1995 aus den Ozonsondenaufstiegen bestimmt (Abbildung 7.10).

Mittlere diabatische Abkühlungsraten für den Winter 1994/54 stehen noch nicht zur Verfügung. Sie können jedoch anhand von Beobachtungen aus den vergangenen Jahren abgeschätzt werden. Die Abkühlungsraten nehmen mit der Höhe bzw. mit der potentiellen Temperatur zu. Zudem ändern sich die Abkühlungsraten im Laufe des Winters und nehmen zu hohen Breiten hin zu

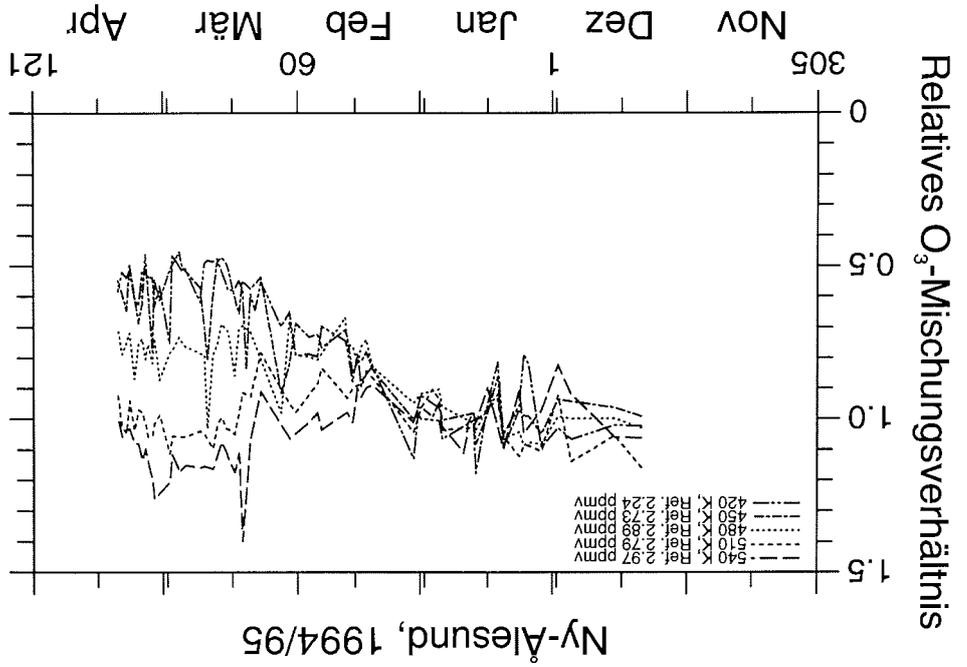


Abbildung 7.8 Relatives Ozonmischungsverhältnis in den isentropen Niveaus 420 K, 450 K, 480 K 510 K und 540 K Niveaus, normiert auf Anfang Januar 1995.

(Strahan et al., 1994).

Rosenfeld et al. (1994) haben Abkühlungsraten für die Winter 1988/89 und 1991/92 aus einem Strahlungsstransportmodell unter Verwendung von Temperaturmessungen berechnet. In der unteren Stratosphäre lagen die über den Polarwirbel gemittelten Abkühlungsraten in beiden Wintern im Januar und Februar bei 0,4 K bis 0,6 K pro Tag. Im März 1992 geht die Abkühlungsrate auf 0,3 K pro Tag zurück.

Eine weitere Methode zur Bestimmung von Abkühlungsraten nutzt die Änderung der Vertikalprofil des Distickstoffoxids (N_2O) durch das diabatische Absinken. Distickstoffoxid hat in der unteren Stratosphäre eine extrem lange photochemische Lebensdauer. Die Änderungen seines Mischungsverhältnisses unterliegen bei der Abkühlung des Polarwirbels nur der Dynamik des Absinkens. Strahan et al. (1994) haben aus den Messungen von N_2O während der AASE 2 Kampagne (1991-92) monatliche Abkühlungsraten für unterschiedliche isentrope Niveaus berechnet und mit Modellergebnissen verglichen. Abbildung 7.11 verdeutlicht die Höhenabhängigkeit und die saisonalen Variationen der Abkühlungsraten. Die auf diese Weise bestimmten Abkühlungs-

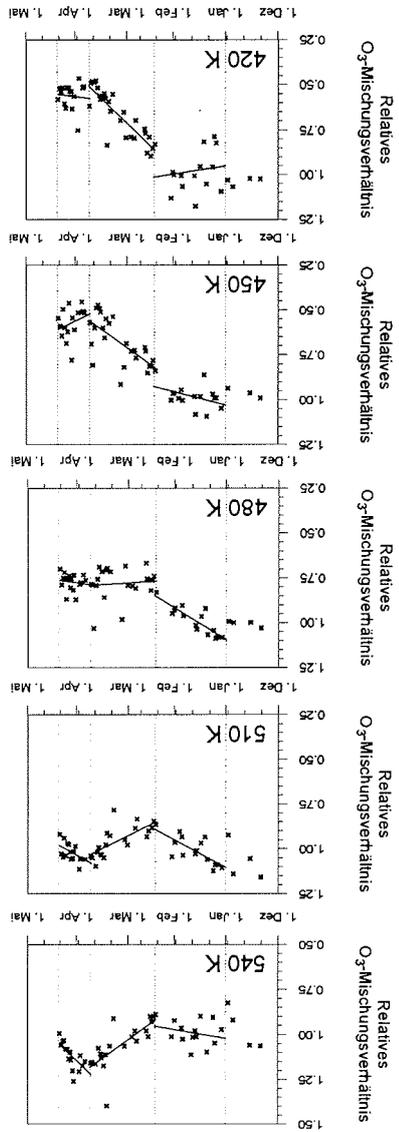


Abbildung 7.9 Zeitreihen der Ozonmischungsverhältnisse in verschiedenen isentropen Niveaus im Winter 1994/95 einschließlich linearer Fits für ausgewählte Zeitperioden. Nähere Erläuterung im Text.

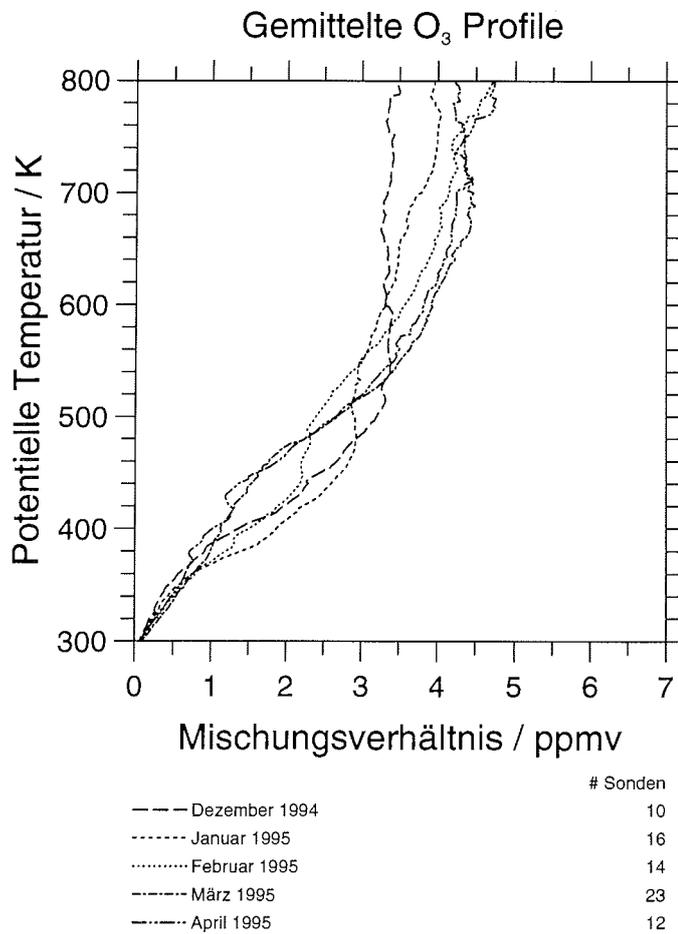


Abbildung 7.10 Monatsmittel des Ozonmischungsverhältnisses in Abhängigkeit von der potentiellen Temperatur.

Tabelle 7.1 Prozentuale Abnahmen/Zunahmen (und Standardabweichungen) des Ozonmischungsverhältnisses in fünf isentropen Niveaus für den 1. Januar bis 11. April 1995. Berechnet durch lineare Regression der relativen Ozonmischungsverhältnisse in den angegebenen Zeitintervallen.

θ -Niveau (K)	Ozonzunahme/-abnahme (%/Tag)		
	1.01.–12.02.	12.02.–23.03.	23.03.–11.04.
420	+0.15±0.28	-0.89±0.10	-0.12±0.32
450	-0.24±0.14	-0.66±0.14	+0.44±0.38
480	-0.58±0.09	+0.06±0.14	-0.13±0.22
510	-0.50±0.13	+0.46±0.10	-0.50±0.21
540	-0.16±0.18	+0.67±0.13	-0.87±0.26

raten liegen für die Monate Dezember bis Februar im 470 K Niveau bei ca. 0.7 K pro Tag und im 410 K Niveau bei ca. 0.5 K pro Tag. Im Monat März ist die Diskrepanz zwischen Modellergebnissen und berechneten Abkühlungsraten größer, als in den anderen Monaten, was auf weitere dynamische Einflüsse auf das N₂O-Profil, als nur diabatisches Absinken schließen lässt. Die berechneten Abkühlungsraten sind aus diesem Grunde sicherlich zu hoch angesetzt. Ein Vergleich der N₂O-Konzentrationen vom Januar und Februar mit denen der AASE 1 Kampagne (Loewenstein et al., 1990) zeigt eine sehr gute Übereinstimmung der Abkühlungsraten in beiden Wintern (Strahan et al., 1994).

Rex (1993) gibt eine mittlere Abkühlungsrate in 475 K innerhalb des Polarwirbels von 0.7 K pro Tag an. Dieser Wert stützt sich auf berechnete Abkühlungsraten für den Winter 1991/92 (Rex, 1993; von der Gathen et al., 1995b).

Aufgrund der oben zitierten Ergebnisse wurde bei der diabatischen Korrektur der Ozonabbauraten für jedes isentrope Niveau eine individuelle Abkühlungsrate verwendet (Tabelle 7.2). Die Höhe der Abkühlungsraten für Januar und Februar orientieren sich an den oben genannten Größenordnungen. Im März wurden dieselben Zahlenwerte wie in den beiden Vormonaten verwendet, da über Ny-Ålesund vor Ende März keine starke Erwärmung der Stratosphäre beobachtet wurde (siehe Abschnitt 7.1.1).

Die aus dem diabatischen Absinken resultierenden mittleren monatlichen Änderungen des Ozonmischungsverhältnisses auf den betrachteten isentropen Niveaus können ebenfalls Tabelle 7.2 entnommen werden. Die geringen Änderungen in den Niveaus 480 K und 510 K im Januar rühren von dem sehr kleinen vertikalen Gradienten des Mischungsverhältnisses in diesem Höhenbereich her.

Monthly Zonal Mean Heating Rates, Averaged from 65–90 N

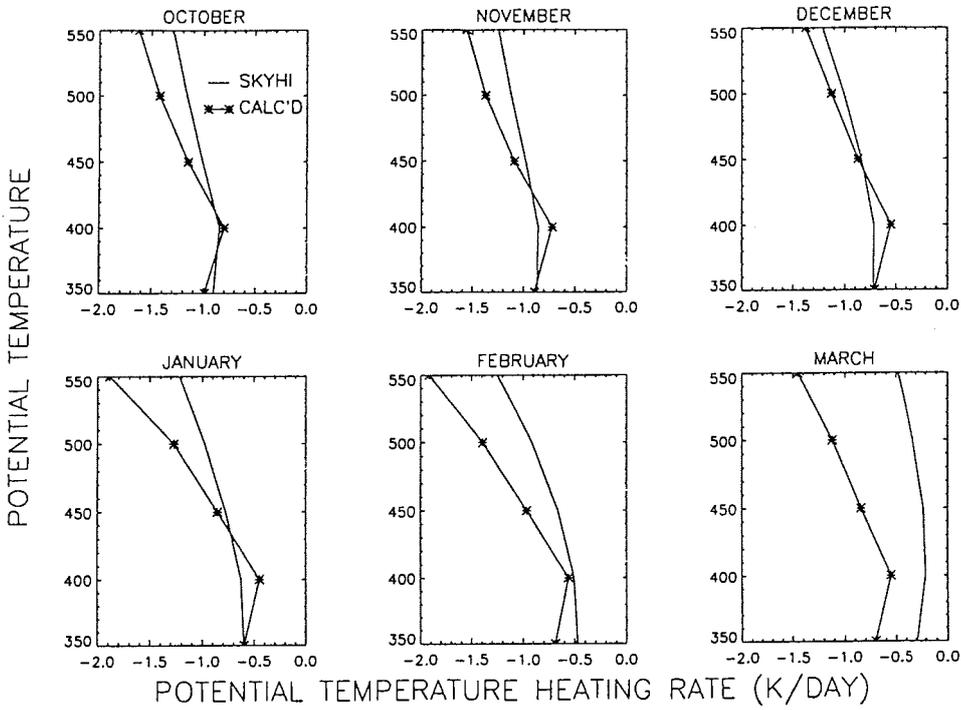


Abbildung 7.11 Monatliche Abkühlungsraten berechnet aus N₂O-Trends (Sterne) und aus dem SKYHI Modell (ausgezogene Linie) nach Strahan (1994).

Tabelle 7.2 Mittlere diabatische Kühlungsraten und die daraus resultierenden dynamisch bedingten Änderungsraten des Ozonmischungsverhältnisses in fünf isentropen Niveaus.

θ -Niveau (K)	Abkühlungsrate (K/Tag)	dynamisch bedingte Zunahme des Ozonmischungsverhältnisses (%/Tag)		
		Jan.	Feb.	Mär.
420	0.5	0.47±0.10	0.32±0.02	0.38±0.08
450	0.6	0.27±0.06	0.29±0.06	0.45±0.10
480	0.7	0.03±0.01	0.28±0.06	0.58±0.13
510	0.8	0.02±0.00	0.35±0.08	0.50±0.11
540	0.9	0.13±0.03	0.40±0.09	0.24±0.05

Fehlerabschätzung

Die absoluten Variationen der Abkühlungsraten können aufgrund der in Abbildung 7.11 in den unteren isentropen Niveaus mit 0.1 K pro Tag abgeschätzt werden. Mit dem isentropen Niveau nimmt auch die saisonale Variabilität der Abkühlungsraten zu. Demnach läßt sich die Annahme eines relativen Fehlers der Abkühlungsraten von 20 % mit den Beobachtungen vereinbaren.

Der Fehler des vertikalen Gradienten der mittleren Ozonmischungsverhältnisse wurde aus dem mittleren quadratischen Fehler der Mittelung der Profile auf ca. 10% abgeschätzt. Der Fehler der bestimmten Regressionsparameter ist dagegen vernachlässigbar klein. Die resultierenden Fehler der Ozonabbauraten (siehe folgender Abschnitt) liegen somit im Bereich von 10 bis 20 %.

7.2.3 Resultierende Ozonabbauraten

Von Anfang Januar bis 11. Februar 1995 konnte optisch noch kein Einbruch in den Ozonprofilen festgestellt werden. Vom 12. Februar bis 23. März 1995 zeigte sich der Ozonabbau deutlich in den Sondenprofilen (siehe oben) in 20 km Höhe. Ab 25. März 1995 erwärmte sich die Stratosphäre oberhalb von 510 K und das Ozonmischungsverhältnisses nahm erheblich zu. In den darunterliegenden Niveaus blieb es weiterhin kalt. Die Karten der potentiellen Vorticity zeigen, daß der Polarwirbel im 550 K Niveau zu diesem Zeitpunkt nicht mehr über Ny-Ålesund lag. Im 475 K Niveau lag Ny-Ålesund noch im Kernbereich des Wirbels. Während des Zeitraums 12. Februar bis 23. März 1995 ereigneten sich zwei kleinere Erwärmungen. Die erste fand vom 19. bis 22. Februar 1995 und die zweite vom 5. bis 8. März 1995 statt.

Die prozentualen Abbauraten für die drei Zeiträume sind in der Tabelle 7.3 dargestellt. Der

Tabelle 7.3 Ozonabbauraten für unterschiedliche isentrope Niveaus für verschiedene Zeitintervalle im Zeitraum 1. Januar bis 11. April 1995.

θ -Niveau (K)	Ozonabbauraten (%/Tag)		
	1.01.–12.02.	12.02.–23.03.	23.03.–11.04.
420	-0.28±0.17	-1.25±0.12	-0.58±0.30
450	-0.51±0.15	-1.04±0.17	-0.09±0.39
480	-0.68±0.11	-0.38±0.16	
510	-0.61±0.13	+0.02±0.14	
540	-0.36±0.18	+0.36±0.16	

Ozonabbau beginnt im Januar 1995 in den Niveaus 480 K und 510 K. Dort ist die Abbauraten in diesem Zeitraum mit über -0.6% pro Tag am höchsten. Im untersten Niveau ist die Rate im Vergleich dazu noch relativ klein. Ab Mitte Februar verlagert sich der Ozonabbau in die untere Stratosphäre. Im Zeitraum vom 12. Februar 1995 bis 23. März 1995 steigt die Abbauraten im 420 K Niveau auf -1.25% pro Tag und im 450 K Niveau auf ca. -1% pro Tag an. In den darüberliegenden isentropen Niveaus geht der Ozonabbau im Laufe dieser Periode zurück und im 540 K Niveau ist eine Ozonzunahme zu verzeichnen. Ein Anstieg des Ozonmischungsverhältnisses innerhalb des Polarwirbels in einem isentropen Niveau wird nur durch diabatisches Absinken hervorgerufen. Die beiden Summanden der Gleichung (7.2) sollten sich gerade aufheben. Das bedeutet, daß entweder die Abkühlungsrate in diesen Niveau unterschätzt wurde oder Luftmassen auf andere Weise diabatisch in dieses Niveau transportiert wurden. In diesem Winter war der Ozonabbau innerhalb des Polarwirbels bedingt durch den Ozonabbau geringer als der der umgebenden Luftmassen. Ein Transport von Luftmassen in den Wirbel hinein führt deshalb in diesem Winter auch zu einer Erhöhung des Ozonmischungsverhältnisses. Normalerweise ist der umgekehrte Fall gegeben, und ein Transport während einer mittwinterlichen Erwärmung führt zu einer Abnahme des Mischungsverhältnisses.

In dem letzten betrachteten Zeitraum vom 23. März bis 11. April 1995 liegt Ny-Ålesund in den untersten drei Niveaus noch innerhalb des Polarwirbels. Im 420 K Niveau ist eine Abbauraten von 0.58% zu verzeichnen, im 450 K Niveau ist der Abbau nicht mehr signifikant. Die Abbauraten oberhalb des 450 K Niveau sind in der Tabelle 7.3 nicht mehr wiedergegeben. Die berechneten Werte liegen zwischen -0.74% und -1.2% und sind nicht mehr realistisch und in der Überschätzung der Abkühlungsrate im April begründet. Für die 11 Tage im April wurde dieselbe Abkühlungsrate wie im für den März verwendet. Sie ist sicherlich viel zu hoch, da Anfang April bereits eine Erwärmung der Stratosphäre eingestetzt hat (Abbildung 7.2).

Der Beginn des Zeitraums des Ozonabbaus verlagert sich von Anfang Januar in der mittleren Stratosphäre zu Anfang Februar in die untere Stratosphäre. Diese Beobachtung ist mit dem Zeitpunkt des Beginns der solaren Einstrahlung in die unterschiedlichen Niveaus zu erklären.

Im gesamten Zeitraum des Ozonabbaus hat das Ozonmischungsverhältnis im 420 K Niveau um ca. 60 % und 450 K Niveau um ca. 54 % abgenommen. Im 480 K Niveau beträgt die Abnahme bis 23. März 1995 noch fast 40 %. Im 510 K und 540 K Niveau dauert der Ozonabbau bis zum 12. Februar an und beträgt nur noch ca. 26 % bzw. 15 %.

Eine umfassende Untersuchung des Ozonabbaus im gesamten Polarwirbel wird im Rahmen des Match-Projektes derzeit von *M. Rex* am AWI-Potsdam unter Verwendung aktueller diabatischer Abkühlungsraten durchgeführt.

7.3 Vergleich mit Ozonabbauraten früherer Jahre

Die Ozonabbauraten im arktischen Polarwirbel in den letzten Jahren weisen einen positiven Trend auf. *Salawitch et al.* (1990) berechneten aus Messungen von Chlormonoxid während 39 Tagen der Kampagne AASE 1 im Januar und Februar 1989 eine mittlere Abbaurate von 0.3 % pro Tag. (Im Dunkeln $3 \cdot 10^{-5}$ %, in der Sonne 0.5 %). Der über den gesamten Zeitraum integrierte Ozonabbau in der Schicht zwischen 440 K und 470 K betrug 12 %. *Schoeberl et al.* (1990) haben während derselben Kampagne aus den Trends von Ozon und Distickstoffoxid im Niveau von 440 K bis 460 K eine Abbaurate von $0.44 \% \pm 0.3 \%$ bestimmt. *Waters et al.* (1993) berechneten aus Chlormonoxidprofilen aus den Messungen des Microwave Limb Sounders (MLS) auf dem Satelliten UARS für den Winter 1991/1992 eine über den gesamten Polarwirbel integrierte Abbaurate von 1 % pro Tag in der Schicht zwischen 450 K und 480 K. Die höchste Abbaurate in einem Zeitraum von 13 Tagen war 4 % pro Tag. *Rex* (1993) berechnete Ozonabbauraten für den Winter 1991/1992, indem er die Luftpakete, deren Ozongehalt mittels einer Ozonsonde gemessen wurde, auf isentropen Niveaus mit Hilfe von Trajektorien zurückverfolgte. Durch diese Methode wurden horizontale Mischungsprozesse ausgeschlossen. Vertikale Bewegungen durch die isentropen Flächen hindurch wurden über Abkühlungsraten korrigiert. Wurde dasselbe Luftpaket ein weiteres Mal von einer Ozonsonde beprobt, konnte die Änderung des Ozonmischungsverhältnisses nur durch chemischen Abbau verursacht worden sein. Die Ozonabbaurate wurde für die Zeitdauer berechnet, in der die Trajektorie in Sonnenlicht lag. Ihr mittlerer Wert für Januar und Februar 1992 beträgt -0.231 ± 0.026 % pro Sonnenstunde oder 0.9 ± 0.2 % pro Tag. Bezogen auf die Gesamtfläche des Polarwirbels ergibt sich daraus ein Ozonabbau von 38 ± 4 % in der Schicht zwischen 465 K und 485 K (*von der Gathen et al.*, 1995b; *Rex*, 1993). Eine Ozonabbaurate für den Winter 1992/93 wurde von *Larsen et al.* (1994) aus den Ozonsondenaufstiegen in Scoresbysund und Thule auf Grönland berechnet. Sie liegt im 475 K Niveau im Zeitraum von Mitte Januar bis Ende März in Mittel bei 1.1 ± 0.2 % pro Tag. Der integrierte Abbau beträgt damit ca. 30%. Im Winter 1993/94 war der Ozonabbau gering. Er dauerte über Ny-Ålesund etwa 4 Wochen an, von Mitte Februar bis Mitte März. Er kann aus den relativen Änderungen des Mischungsverhältnisses mit ca. 0.3 % pro Tag abgeschätzt werden.

Im Vergleich zu den letzten 5 Jahren konnte in Winter 1994/95 der bisher am längsten andauernde Ozonabbau beobachtet werden. Er betrug fast drei Monate und begann Anfang Januar in der mittleren Stratosphäre und setzte sich im Laufe des Februars in die untere Stratosphäre durch, wo

er bis Ende März anhielt. Die Abbauraten liegen mit bis zu -1.25% in der unteren Stratosphäre noch unterhalb der Abbauraten in der Antarktis, die typischerweise in der Größenordnung -2% pro Tag liegen.

Im arktischen Polarwirbel ist ein vergleichbar starker Abbau der Ozonschicht möglich, wenn die dynamischen Voraussetzungen gegeben sind. Im Winter 1994/95 war der Wirbel über einen langen Zeitraum sehr stabil und extrem kalt.

7.4 Spurengase und Abbaureaktionen

Wenn ein chemischer Ozonabbau nach dem Muster des antarktischen 'Ozonlochs' in der Arktis stattgefunden haben sollte, müßten vergleichbare Konzentrationsänderungen der involvierten Spurengase zu beobachten sein.

In Ny-Älesund werden u. a. die Säulendichten von HCl, ClONO₂, HNO₃ und NO₂ mit einem Fourier-Transform-Infrarot-Spektrometer (FTIR) gemessen (Notholt et al., 1995). Diese Meßmethode nutzt die Absorptionsbanden der Spurengase im Infraroten (IR). Während der Polarnacht wird der Vollmond als IR-Lichtquelle für die Messungen verwendet. Die vermessene Luftsäule ist jedoch nicht immer mit der von den Ozonsonden beprobten Luftmassen identisch. Das FTIR mißt eine sehr schräge Säule durch die Atmosphäre, da der Mond und die Sonne aufgrund der hohen geographischen Breite in relativ flachen Winkeln zum Horizont stehen.

In den Abbildungen 7.12, 7.13 und 7.14 sind die Konzentrationen der Spurengase HCl, HNO₃ und NO₂ der letzten vier Jahre zum Vergleich dargestellt.

Im Winter 1994/95 ist eine deutliche Abnahme der Chlor-Reservoirverbindung HCl erfolgt. Die Meßwerte liegen im Januar und Februar mit $2 \cdot 10^{15}$ Moleküle cm⁻² mehr als 50 % unterhalb den Meßwerten des Sommers 1994. Diese Abnahme deutet auf eine erhöhte Freisetzung von aktiven Chlorverbindungen aus dieser Reservoirverbindung durch heterogene Reaktionen an den Oberflächen der im Dezember und Januar diesen Winters beobachteten PSCs hin. Eine vergleichbare Abnahme der HCl Säulendichte ist im Winter 1992/93 erfolgt, möglicherweise auch im Winter 1991/92, da die Meßwerte im März 1992 noch sehr niedrig sind.

Die Messungen der Chlor-Reservoirverbindung ClONO₂ sind zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch nicht ausgewertet. Die Auswertung gestaltet sich schwieriger als für die meisten anderen Spurengase, da seine relativ schwache Absorptionsbande im IR bei 780 cm⁻¹ mit der von CO₂ interferiert (Notholt et al., 1995). Wenn die beiden Reservoir nach (Gleichung (2.11), Seite 9) abgebaut werden, ist zu erwarten, daß sie in gleichem Maße reduziert werden. Die FTIR-Messungen des Winters 1992/93 (Abbildung 7.15) bestätigen diese Vermutung. Die stärkere Zunahme des Chlornitrats im Vergleich zu HCl von Februar bis März entspricht der Erwartung, da Chlor durch solare Einstrahlung photolytisiert und ClO bildet, was dann mit NO₂ zu ClONO₂ reagiert, vorausgesetzt NO₂ steht zur Verfügung (siehe unten).

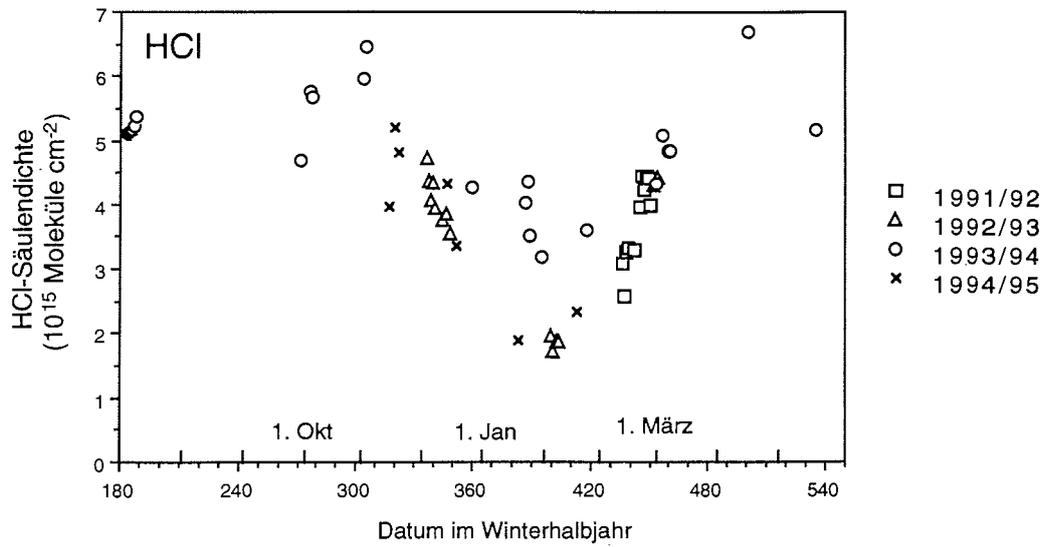


Abbildung 7.12 HCl-Säulendichten aus FTIR-Messungen von *Notholt et al.* (1995) in Ny-Ålesund in den Wintern 1991/92 bis 1994/95.

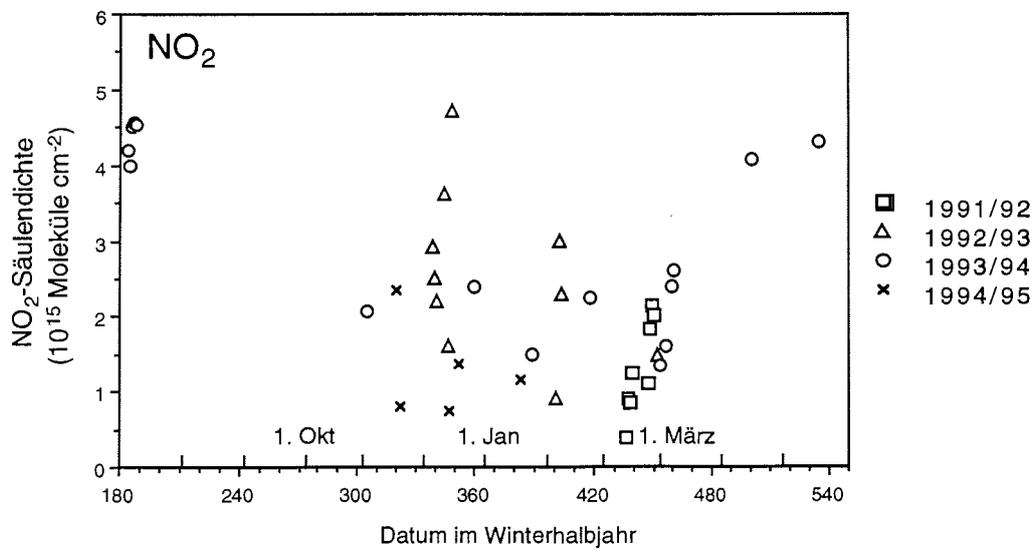


Abbildung 7.13 NO_2 -Säulendichten aus FTIR-Messungen von *Notholt et al.* (1995) in Ny-Ålesund in den Wintern 1991/92 bis 1994/95.

7. Ozonverluste im arktischen Polarwirbel im Winter 1994/95

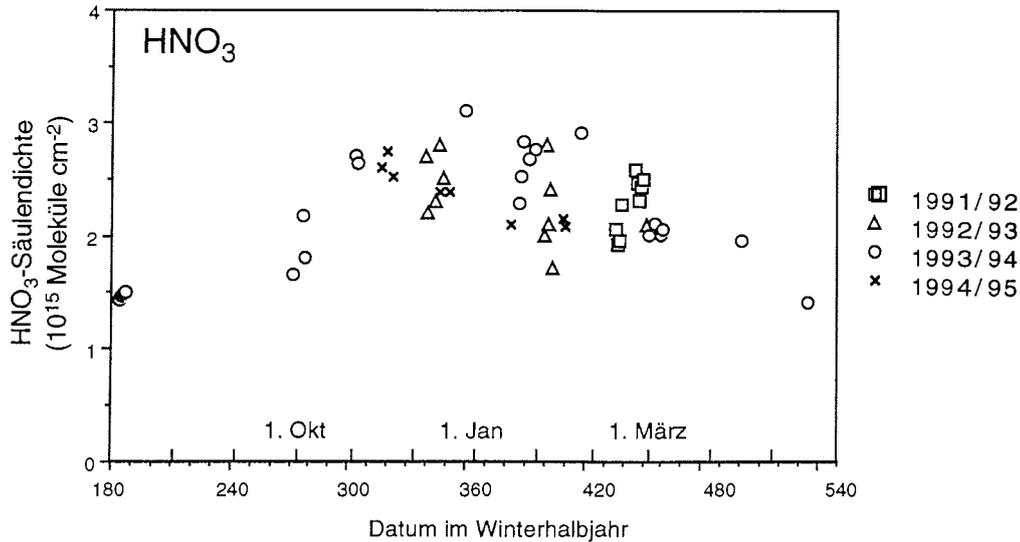


Abbildung 7.14 HNO₃-Säulendichten aus FTIR-Messungen von Notholt et al. (1995) in Ny-Ålesund in den Wintern 1991/92 bis 1994/95.

Ausgehend von den Vertikalprofilen des Auswerteprogramms für die FTIR-Spektren konnten Notholt et al. (1995) die Abnahme von HCl mit mindestens 70% im Höhenbereich von 16–22 km feststellen und eine starke Abnahme von ClONO₂ sogar bis in die Höhe von 26 km. Diese Beobachtungen beziehen sich auf den Zeitraum vom 2. bis 14. Dezember 1992. Im Januar 1993 wurden noch geringere Säulendichten beider Spurengase gemessen.

Die Reduktion der Chlorreservoirverbindungen im Winter 1994/95 ist mit denen in Winter 1992/93 vergleichbar. In beiden Wintern wurden PSCs beobachtet. Im Winter 1992/93 gab es ein PSC Ereignis Anfang Januar und eine 18-tägige Periode von Mitte bis Ende Januar (Beyerle, 1994). Im letzten Winter dauerte die Periode mindestens 4 Wochen an. Diese Beobachtungen zeigen, daß Chlor aus seinen Reservoirformen in aktive Chlorverbindungen umgewandelt wurde. Wenn über die katalytischen Reaktionen Ozon abgebaut worden ist, müßte der Chlormonoxidgehalt stark ansteigen. Stratosphärisches Chlormonoxid wird an der Koldewey-Station mit einem Mikrowellenradiometer der Universität Bremen gemessen. Eine vorläufige Auswertung der Spektren läßt vermuten, daß der ClO-Gehalt äußerst gering ist und nahe am Detektionslimit (20 mK Strahlungsleistung) liegt (Schwaab, persönliche Mitteilung, 1995). Chlormonoxidprofile werden mit dem Microwave Limb Sounder vom UARS-Satelliten gemessen (Waters et al., 1993). Ein erhöhter ClO-Gehalt von mehr als 1 ppbv ist ein Indikator für die Freisetzung aktiver Chlorverbindungen aus den Reservoirs. In der Antarktis werden gegen Ende der Polarnacht im Wirbel 2.0 bis 2.5 ppbv beobachtet. Im arktischen Polarwirbel sind 1.5 ppbv typisch.

Damit die aktiven Chlorverbindungen nicht wieder über die Reaktion (2.10) in die Reservoir-

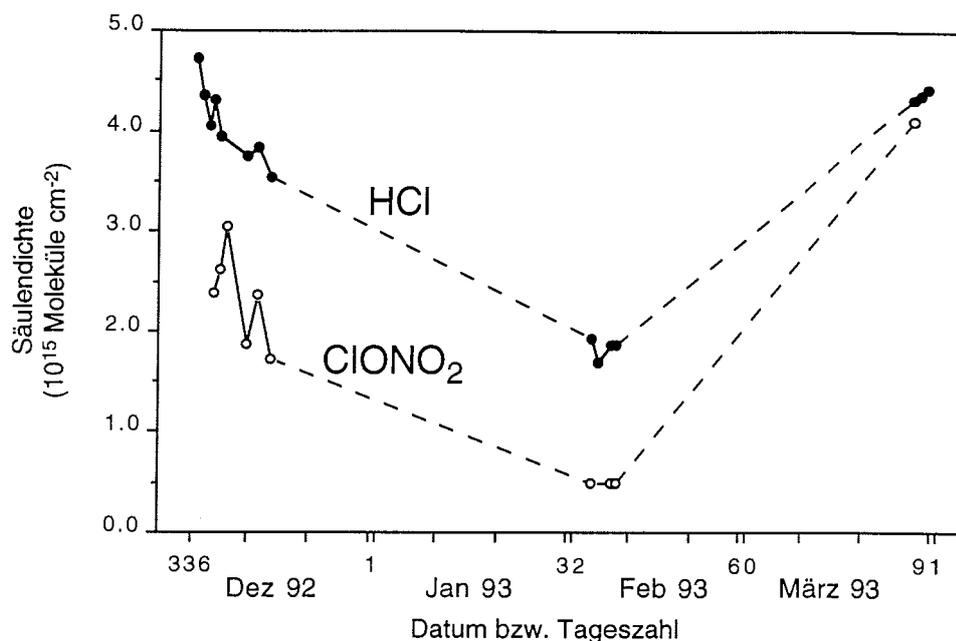


Abbildung 7.15 Vergleich HCl und ClONO₂ für 1992/93 nach FTIR-Messungen von Notholt et al. (1995) in Ny-Ålesund.

substanz ClONO₂ umgewandelt werden, muß das meiste NO_x aus der Stratosphäre entfernt worden sein. Der Stickstoffdioxid-Gehalt geht im Dezember und Januar auf Werte von 1 bis $1.5 \cdot 10^{16}$ Moleküle cm^{-2} zurück (vergleiche Abbildung 7.13). NO₂ wurde im Winter 1994/95 ab Mitte Februar von F. Wittrock von der Universität Bremen mittels der Differential Optical Absorption Spectroscopy (DOAS) gemessen (Abbildung 7.16). Da zu diesem Zeitpunkt die Sonne bereits für wenige Stunden am Tag zurückgekehrt ist, steigen die Säulendichten leicht auf Werte zwischen 1.5 und $2.5 \cdot 10^{15}$ Moleküle cm^{-2} an. (Die Übereinstimmung der beiden Meßmethoden ist bemerkenswert gut.) Solange Ny-Ålesund innerhalb des Wirbels liegt, bleibt der NO₂-Gehalt niedrig. Erst nach dem 21. März steigt er sehr schnell auf Werte um $4 \cdot 10^{15}$ Moleküle cm^{-2} und nach einem kurzzeitigen Einbruch der Werte bei der Rückkehr des Polarwirbels auf über $5 \cdot 10^{15}$ Moleküle cm^{-2} im April 1995.

Die HNO₃-Konzentrationen gingen während der PSC-Bildung leicht zurück. Sie liegen im Winter 1994/95 im November noch in vergleichbarer Höhe wie im November 1993, fallen dann jedoch von Dezember bis Februar auf Werte um $2 \cdot 10^{16}$ Moleküle cm^{-2} . Zum gleichen Zeitpunkt liegen sie im Vorjahr noch bei $3 \cdot 10^{16}$ Moleküle cm^{-2} und sinken erst im April beim Aufbrechen des Wirbels auf $2 \cdot 10^{16}$ Moleküle cm^{-2} . Die sommerlichen Werte liegen bei $1.5 \cdot 10^{16}$ Moleküle cm^{-2} .

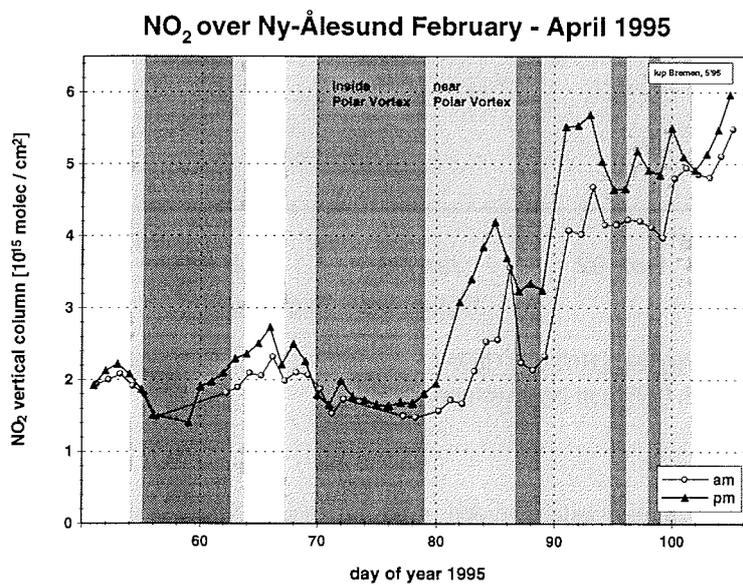


Abbildung 7.16 NO₂ Gesamtsäule über Ny-Ålesund im Frühjahr 1995, nach DOAS-Messungen (Wittrock, persönliche Mitteilung, 1995).

7.5 Schlußfolgerungen

Die Spurenstoff-Messungen belegen nicht, daß im Winter 1994/95 eine Denitrifizierung im arktischen Polarwirbel stattgefunden hat. Vielmehr ist zu vermuten, daß eine Denitrifizierung, also die Bindung von HNO_3 an die PSCs stattgefunden hat. Für einen lokal, auf einen Höhenbereich begrenzten Ozonabbau ist es jedoch nicht notwendig, daß HNO_3 völlig aus der Stratosphäre entfernt wird. Wenn es durch Sedimentation aus einigen Niveaus verschwindet, ist dort keine Rückreaktion des Chlors in seine Reservoirverbindungen möglich (Brune et al., 1991). Sobald diese Höhenbereiche solarer Einstrahlung ausgesetzt sind, werden Chlorradikale und Chlormonoxid produziert und Ozon abgebaut, was durch die Höhenabhängigkeit der Ozonabbauraten verdeutlicht wird.

Vorläufige Ergebnisse des Match-Experimentes zeigen, daß der Ozonabbau zwischenzeitlich relativ schnell zurückgegangen ist (z. B. Ende Februar 1995), bevor erneute PSC-Bildung zu weiterem Abbau führten. (von der Gathen und Rex, persönliche Mitteilung, 1995). Das bedeutet, daß eine Rückbildung von ClO in seine Reservoirverbindung ClONO_2 stattgefunden haben muß und keine vollständige Denitrifizierung stattgefunden haben kann.

Die Ozonabbaurate über Ny-Ålesund in diesem Winter ist im Vergleich zu den vergangenen Jahren hoch. In dieser Arbeit wurde der Ozonabbau nur für einen Ort innerhalb des Polarwirbels berechnet. Die Mittelungsintervalle wurden relativ großzügig gewählt, um eine genügende statistische Signifikanz zu erhalten. Es kann aus dieser lokalen Abbaurate keine Ozonabbaurate für den gesamten Wirbel abgeleitet werden. Das Auftreten von weiteren PSCs im März, die über Ny-Ålesund nicht beobachtet wurden ist ein Indiz dafür, daß die Gesamtabbaurate des Polarwirbels noch höher liegt.

Die hohen Ozonabbauraten in dem kalten und stabilen Polarwirbel des Winters 1994/95 zeigen, daß das Potential für einen massiven Ozonabbau, wie er über der Antarktis beobachtet wird, auch in der Arktis gegeben ist. Die größere dynamische Variabilität der nordhemisphärischen Zirkulation wird jedoch verhindern, daß der Polarwirbel diese Bedingungen jedes Jahr bietet.

Die QBO befindet sich zur Zeit in der Westphase. Aufgrund ihrer mittleren Periode von 26 Monaten ist zu erwarten, daß sie auch im nächsten Winter noch nicht wieder in die Ostphase wechselt. Der Sonnenfleckenzyklus befindet sich 1996 im Minimum. In dieser Konfiguration ist bisher noch keine starke mittwinterliche Erwärmung aufgetreten (Labitzke und Loon, 1988).

Im nächsten Winter könnte der Polarwirbel demnach wieder sehr stabil werden. Sollte das der Fall sein, ist erneut mit einem starken Ozonabbau über der Arktis zu rechnen.

8. Literaturverzeichnis

- Ancellet, G., J. Pelon, M. Beekmann, A. Papayannis und G. Megie, Ground-based Lidar studies of ozone exchanges between the stratosphere and the troposphere, *J. Geophys. Res.*, **96** (D12), 22401–22421, 1991.
- Ancellet, G., M. Beekmann, A. Papayannis, Impact of a cutoff low development on downward transport of ozone in the troposphere, *J. Geophys. Res.*, **99**, 3451–3468, 1994.
- Anderson, J. G., W. H. Brune, M. H. Proffit, Ozone destruction by chlorine radicals within the Antarctic vortex: The spatial and temporal evolution of ClO-O₃ anticorrelation based on in situ ER-2 data. *J. Geophys. Res.*, **94**, 11465–11479, 1989.
- Andrews, D. G. J. R. Holton, C. B. Leovy, *Middle Atmosphere Dynamics*, Academic Press, Inc., 1987.
- Ansmann, A. M. Riebesell und C. Weitkamp, Measurement of atmospheric aerosol extinction profiles with a Raman LIDAR, *Optics Lett.*, **15**, 746–748, 1990.
- Arnold, F., H. Schlager, J. Hoffmann, P. Metzinger und S. Spreng, Evidence for stratospheric nitric acid condensation from balloon and rocket measurements in the Arctic, *Nature*, **342**, 493–497, 1989.
- Atkinson, R. J., W. A. Matthews, P. A. Newman und R. A. Plumb, Evidence of the mid-latitude impact of Antarctic ozone depletion, *Nature*, **340**, 290–293, 1989.
- Bates, D. R. und M. Nicolet, The photochemistry of atmospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, **55**, 301, 1950.
- Berg, W. W., P. J. Crutzen, F. E. Grabels, S. N. Gitlin und W. A. Sedlacek, First measurements of total chlorine in the lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **7**, 937, 1980.
- Bergmann, L. und C. Schaefer, *Lehrbuch der Experimentalphysik, Band III: Optik*, 8. Auflage, herausgegeben von H. Gobrecht, Walter de Gruyter, Berlin, 1987.
- Beyerle, G., Untersuchungen stratosphärischer Aerosole vulkanischen Ursprungs und polarer stratosphärischer Wolken mit einem Mehrwellenlängen-Lidar auf Spitzbergen (79°N, 12°E), *Berichte zur Polarforschung*, **138**, 1994.
- Beyerle, G. und R. Neuber, The stratospheric aerosol content above Spitsbergen during winter 1991/92 *Geophys. Res. Lett.*, 1993.

-
- Beyerle, G. R. Neuber, O. Schrems, F. Wittrock, B. Knudsen, Multi-wavelength LIDAR measurements of stratospheric Aerosols above Spitsbergen during winter 1992/93, *Geophys. Res. Lett.*, , 1993.
- Brasseur, G. und S. Solomon, *Aeronomy of the Atmosphere*, D. Reidel, Dordrecht, 1986.
- Brune, W. H., J. G. Andersson, D. W. Toohey, D. W. Fahey, S. R. Kawa, R. L. Jones, D. S. McKenna, L. R. Poole, The Potential for Ozone Depletion in the Arctic Polar Stratosphere, *Science*, **252**, 1260–1266, 1991.
- Browell, E. V., C. F. Butler, S. Ismail, P. A. Robinette, A. F. Carter N. S. Hogdon, O. B. Toon, M. R. Schoeberl und A. F. Tuck, Airborne lidar observations in the wintertime Arctic stratosphere: Polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Lett.*, **19**, 385–388, 1990.
- Chapman, S., A Theory of upper-atmosphere ozone, *Mem. Roy. Meteorol. Soc.*, **8**, 103, 1930.
- Continuum, Operation and maintenance manual NY60 & 61, Continuum, Santa Clara, 1990.
- Crutzen, P. J., F. Arnold, Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: A major cause for springtime 'ozone hole', *Nature*, **324**, 651–655, 1986.
- Danielsen, E. F., Stratospheric-tropospheric Exchange Based on Radioactivity, Ozone and Potential Vorticity, *J. Atmos. Sci.*, **25**, 502–518, 1968.
- Drdla, K., A. Tabazadeh, R. P. Turco, M. Z. Jacobson, J. E. Dye, C. Twohy und D. Baumgardner, Analysis of the physical state of one Arctic polar stratospheric cloud based on observations, *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 2475–2478, 1994
- Dunkerton, T. J., D. P. Delisi, Evolution of Potential Vorticity in the Winter Stratosphere of January-February 1979, *J. Geophys. Res.*, **91**, 1199–1208, 1986.
- Dutton, J. A., *The Ceaseless Wind. An Introduction to the Theory of Atmospheric Motion*, Dover Public. Inc., New York, 1986.
- Dye, J. E., D. Baumgardner, B. W. Gandrud, S. R. Kawa, K. K. Kelly, M. Loewenstein, G. V. Ferry, K. R. Chan, B. L. Gary, Particle Size Distribution in Arctic Polar Stratospheric Clouds, Growth and Freezing of Sulfuric Acid Droplets, and Implications for Cloud Formation, *J. Geophys. Res.*, **97**, 8015–8034, 1992.
- Farman, J. C., B. G. Gardiner, J. D. Shanklin, Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction, *Nature*, **315**, 207–210, 1985.
- von der Gathen, P., G. Beyerle, R. Neuber, und M. Rex, Stratospheric ozone above Spitsbergen during the 1994/95 winter compared to previous winters, *Annales Geophysicae*, **13** (III), Vortrag auf der EGS-Tagung, Hamburg, 1995.
- von der Gathen, P., M. Rex, N. R. P. Harris, D. Luicic, B. M. Knudsen, G. O. Braathen, H. De Backer, R. Fabian, H. Fast, M. Gil, E. Kyro, I. S. Mikkelsen, M. Rummukainen, J. Stahelin und C. Varotsos, Observational evidence for chemical depletion over the Arctic in winter 1991–1992, *Nature*, **375**, 131–134, 1995.
- Hanson, D. R., The uptake of HNO₃ onto ice, NAT and frozen sulfuric acid, *Geophys. Res. Lett.*, **19**, 2063–2066, 1992.

8. Literaturverzeichnis

- Holton, J. R., *An Introduction to Dynamic Meteorology*, Academic Press, Inc., New York, 1979.
- Holton, J. R. und R. S. Lindzen, An updated theory for the quasi-biennial cycle of the tropical stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, **29**, 1076–1080, 1972.
- Hoskins, B. J., M. E. McIntyre und A. W. Robertson, On the use and significance of isentropic potential vorticity maps, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **111**, 877–946, 1985.
- van de Hulst, H. C., *Light Scattering by Small Particles*, Dover Publications, New York, 1957.
- Inaba, H. und T. Kobayasi, Laser-Raman Radar, *Opto-electronics*, **4**, 101–123, 1972.
- Kawa, S. R., The Arctic polar stratospheric cloud aerosol: Aircraft measurements of reactive nitrogen, total water, and particles, *J. Geophys. Res.*, **97**, 7925–7938, 1992.
- Kerker, M., *The scattering of Light and other electromagnetic radiation*, Academic Press, New York, 1969.
- Knudsen, B., P. von der Gathen, G. O. Braathen, R. Fabian, T. S. Jørgensen, E. Kyro, R. Neuber und M. Rummukainen, Temporal Development of the Correlation between Ozone and Potential Vorticity in the Arctic in the Winters of 1988/89, 1989/90 and 1990/91, *Proc. Quad. Ozone Symp.*, Charlottesville, Virginia, June 4–13, 1992, 504–507, 1992.
- Knudsen, B., Accuracy of the isentropic trajectories calculated for the EASOE campaign. *Second European Symposium on Polar Stratospheric Ozone Research*, Schliersee, 1992.
- Kodera, K., The Solar and Equatorial QBO Influences on the Stratospheric Circulation during the early Northern-Hemisphere Winter, *Geophys. Res. Lett.*, **18**, 1023–1026, 1991.
- Kodera, K., M. Chiba und K. Shibata, A General Circulation Model Study of the Solar and QBO Modulation of the Stratospheric Circulation during the Northern-Hemisphere Winter, *Geophys. Res. Lett.*, **18**, 1209–1212, 1991.
- Labitzke, K., und H. van Loon, Associations between the 11-year solar cycle, the QBO, and the atmosphere. Part I: the troposphere and stratosphere in the Northern Hemisphere in winter, *J. Atmos. Terr. Phys.*, **50**, 197–296, 1988.
- Larsen, N., B. Knudsen, I. S. Mikkelsen, T. S. Jørgensen und P. Eriksen, Ozone depletion in the arctic stratosphere in early 1993, *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 1611–1614, 1994.
- Leovy, C. B., C-R. Sun, M. H. Hitchman, E. E. Remsberg, J. M. Russell, L. L. Gordley, J. C. Gille und L. V. Lyjak, Transport of Ozone in the Middle Stratosphere: Evidence for Planetary Wave Breaking, *J. Atmos. Sci.*, **42**, 230–244, 1985.
- Lindzen, R. S., *Dynamics in Atmospheric Physics*, Cambridge University Press, 1990.
- Lindzen, R. S. und J. R. Holton, A theory of the quasi-biennial oscillation, *J. Atmos. Sci.*, **25**, 1095–1107, 1968.
- M. Loewenstein, J. R. Podolske, K. R. Chan und S. E. Strahan, N₂O as a dynamical tracer in the Arctic vortex, *Geophys. Res. Lett.*, **17**, 477–480, 1990.
- Manney, G. L. und R. W. Zureck, Interhemispheric Comparison of the Development of the Stratospheric Polar Vortex During Fall: A 3-Dimensional Perspective for 1991–1992, *Geophys. Res. Lett.*, **20**, 1275–1278, 1993.

-
- Manney, G. L. et al., Chemical depletion of ozone in the Arctic lower stratosphere during winter 1992-93, *Nature*, **370**, 429-434, 1994.
- Matsuno, T., Vertical Propagation of stationary Planetary Waves in the Winter Northern Hemisphere. *J. Atmos. Sci.*, **27**, 871-883, 1970.
- McGee, T.J., M. Gross, R. Ferrare, W. Heaps und U.Singh, Raman Dial Measurements of Stratospheric Ozone in the presence of volcanic aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, **20**, 955-958, 1993.
- McElroy, M. B., R. S. Salawitch, S. C. Wofsy und J. A. Logan, Reductions of Antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine, *Nature*, **321**, 759-762, 1986.
- McIntyre, M. E. und T. N. Palmer, Breaking planetary waves in the stratosphere, *Nature*, **305**, 593-600, 1983.
- McIntyre, M. E. und T. N. Palmer, The 'surf zone' in the stratosphere, *J. Atmos. Terr. Phys.*, **46**, 825-849, 1984.
- McIntyre, M. E. und T. N. Palmer, A Note on the General Concept of Wave Breaking for Rossby and Gravity Waves, *Pure Appl. Geophys.*, **123**, 964-975, 1985.
- Measures, R.M., *Laser Remote Sensing, Fundamentals and Applications*, John Wiley & Sons, New York, 1984.
- Mie, G., *Ann. Physik*, **25**, 377, 1908.
- Molina, L. T. und M. J. Molina, Production of Cl₂O₂ from the Self-Reaction of the ClO Radical, *J. Phys. Chem.*, **91**, 433-436, 1987.
- Müller, K. P., M. Langer, K. Römke und K. H. Fricke, The state of the stratospheric aerosol at the arctic circle during winter 1994/95, *Annales Geophysicae*, **13** (III), C719, Vortrag auf der EGS-Tagung, Hamburg, 1995.
- Naujokat, B., K. Labitzke, R. Lenschow, B. Rajewski, M. Wiesner und R.-C. Wohlfart, The Stratospheric Winter 1993/94: A Winter with Some Minor Warmings and an Early Final Warming, *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, Berlin, 1994.
- Naujokat, B., *SESAME Reports*, 1995.
- Neuber, R. und B. C. Krüger, The stratospheric ozone layer above Spitzbergen in winter 1989, *Geophys. Res. Lett.*, **17** (4), 321-324, 1990.
- Notholt, J., P. von der Gathen und S. Peil, Heterogeneous conversion of HCl and ClONO₂ during the Arctic winter 1992/93 initiating the ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, im Druck, 1995.
- Platzman G. W., The Rossby Wave, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **94**, 225-248, 1968.
- Plumb, R. A. D. W. Waugh, R. J. Atkinson, P. A. Newman, L. R. Lait, M. R. Schoeberl, E. V. Browell, A. J. Simmons und M. Loewenstein, Intrusions into the lower stratospheric Arctic vortex during the winter of 1991-1992, *J. Geophys. Res.*, **99**, 1089-1105, 1994.
- Pichler, H., *Dynamik der Atmosphäre*, Bibliographisches Institut, Zürich, 1986.
- Prather, M. J., More rapid polar ozone depletion through the reaction of HOCl with HCl on polar stratospheric clouds, *Nature*, **355**, 534-536, 1992.

8. Literaturverzeichnis

- Proffitt, M. H., J.J. Margitan, K.K. Kelly, M. Loewenstein, J.R. Podolske und K.R. Chan, Ozone loss in the Arctic polar vortex inferred from high-altitude aircraft measurements, *Nature*, **347**, 31–36, 1990.
- Lord Rayleigh, *Phil. Mag.*, **41** (Sci. Papers 8 and 9), 1871.
- Reid, S. J. und G. Vaughan, Lamination in ozone profiles in the lower stratosphere, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **117**, 825–844, 1991.
- Reid, S. J. und G. Vaughan, Ozone Laminae near the Edge of the Stratospheric Polar Vortex, *Proc. Quadr. Ozone Symp.*, Charlottesville, Virginia, June 4–13, 1992, 546–5049, 1992.
- Rex, M., Stratosphärische Ozonabbauraten aus den Ozonsondendaten der EASOE-Kampagne, *Diplomarbeit*, Göttingen, 1993.
- Rood, R. B., A critical analysis of the concept of planetary wave breaking, *Pure Appl. Geophys.*, **124**, 1986.
- Rosen, J. M., S. J. Oltmans und W. F. Evans, *Geophys. Res. Lett.*, **16**, 791–794, 1989.
- Rosenfield, J. E., P. A. Newman und M. R. Schoeberl, Computation of diabatic descent in the stratospheric polar vortex, *J. Geophys. Res.*, **99**, 16677–16689, 1994.
- Rummukainen, M., B. Knudsen und P. von der Gathen, Dynamical diagnostics of the edges of the polar vortices, *Ann. Geophys.*, **12**, 1114–1118, 1994.
- Salawitch, R. J., M. B. McElroy, J. H. Yatteau, S. C. Wofsy, M. R. Schoeberl, L. R. Lait, P. A. Newman, K. R. Chan, M. Loewenstein, J. R. Podolske, S. E. Strahan und M. H. Proffitt, Loss of ozone in the arctic vortex for the winter of 1989, *Geoph. Res. Lett.*, **17** (4), 561–564, 1990.
- Schäfer, H. J., P. Scheuch, M. Langer, K. H. Fricke, U. von Zahn und B. M. Knudsen, Lidar observations of polar stratospheric clouds at Andøya, Norway, in January 1992, *Geoph. Res. Lett.*, **21** (13), 1307–1310, 1990.
- Schoeberl, M. R., L. R. Lait, P. A. Newman, J. E. Rosenfield, M. H. Proffitt, K. K. Kelly, M. Loewenstein, J. R. Podolske, S. E. Strahan und K. R. Chan, Stratospheric constituent trends from ER-2 profile data, *Geoph. Res. Lett.*, 1990.
- Shapiro, M. A., T. Hampel und A. J. Krueger, The Arctic tropopause fold, *Monthly Weather Rev.*, **57**, 444–454, 1986.
- Solomon, S., R. R. Garcia, F. S. Rowland, D. J. Wuebbels, On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, **321**, 755–758, 1986.
- Stolarski, R. S., P. Bloomfield, R. D. McPeters und J. R. Herman, Total ozone trends deduced from Nimbus 7 TOMS data, *Geoph. Res. Lett.*, **18**, 1015–1018, 1991.
- Strahan, S. E., J. E. Rosenfield, M. Loewenstein, J. R. Podolske und A. Weaver, Evolution of the 1991–1992 Arctic vortex and comparison with the Geophysical Fluid Dynamics Laboratory SKYHI general circulation model, *J. Geophys. Res.*, **99**, 20731–20723, 1994.
- Steinbrecht, W., Messungen des stratosphärischen Ozons in der Arktis und über dem Äquator mit dem DIAL-Verfahren, *Diplomarbeit*, Universität München, 1987.

-
- Toon, O. B., M. A. Tolbert, Spectroscopic evidence against nitric acid trihydrate in polar stratospheric clouds, *Nature*, **375**, 218–221, 1995.
- Turco, R., O. Toon, P. Hamill, Heterogeneous Physicochemistry of the Polar Ozone Hole, *J. Geophys. Res.*, **94**, 16493–16510, 1989.
- Vigroux, E., Determiation des coefficients moyen d'absorption de l'ozone, *Ann. d. Phy.*, **8**, 709–762, 1953.
- Waters, J. W., L. Froidevaux, W. G. Read, G. L. Manney, L. S. Elson D. A. Flower, R. F. Jarnot und R. S. Harwood, Stratospheric ClO and ozone from the Microwave Limb Sounder on the Upper Atmosphere Research Satellite, *Nature*, **362**, 597–602, 1993.
- Waugh, D. W., Contour surgery simulations of a forced polar vortex, *J. Atmos. Sci.*, **50**, 714–730, 1993.
- Waugh, D. W., R. A. Plumb, Contour advection with surgery: A technique for investigating fine scale structure in tracer transport, *J. Atmos. Sci.*, **?**, 1993.
- Waugh, D. W., R. A. Plumb, R. J. Atkinson, M. R. Schoeberl, L. R. Lait, P. A. Newman, M. Loewenstein, D. W. Toohey, L. M. Avallone, C. R. Webster und R. D. May, Transport out of the lower stratospheric Arctic vortex by Rossby wave breaking, *J. Geophys. Res.*, **99**, 1071–1088, 1994.
- Wayne, R. P., *Chemistry of Atmospheres*, Oxford University Press, 1991.
- Werner, J., K. W. Rothe und H. Walther, Monitoring of the stratospheric ozone layer by laser radar, *Appl. Phys.*, **B32**, 113–118, 1983.
- World Meteorol. Org., Atmospheric Ozone 1985, Global Ozone Descend and Monitor, *Proj.Rept.*, No 16, Vol. I–III, WMO, Geneva, Switzerland, 1986.

