

## **Abschlußbericht des Vorhabens**

Erweiterte Interpretation der mit den Transallfernerkundungsgeräten (LIDAR, MIPAS, DOAS) gewonnenen Datensätzen.

gefördert durch das Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft,  
Forschung und Technologie (BMBF)

Förderkennzeichen 01LO9531/0  
Laufzeit 01/96-12/98

Projektleiter: Priv. Doz. Dr. K. Pfeilsticker  
Institut für Umweltphysik  
Universität Heidelberg

Unterauftragnehmer:  
Dr. D. Perner, MPI-Chemie, Mainz  
Dr. C. E. Blom, Universität Karlsruhe  
und IMK am Forschungszentrum Karlsruhe  
W. Renger, DLR Oberpfaffenhofen

Juli 1999

Der Abbau der Ozonschicht in den mittleren und den polaren Breiten der Nordhemisphäre - vor allem während Winterhalbjahre - ist ein besorgniserregender Vorgang, da unser Lebensraum direkt betroffen ist. Als zum Ende der achtziger Jahre diese Entwicklung zum ersten Male eindeutig nachgewiesen wurde, haben sich nationale sowie internationale Forschungsorganisationen entschlossen, die Prozesse näher zu untersuchen, die für diese Entwicklung maßgeblich sind. Als Teil dieser Anstrengungen wurde u.a. ein Forschungsflugzeug (Transall C-160) mit drei Fernerkundungsinstrumente (LIDAR, LIght Detection and Ranging; MIPAS, Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding; DOAS, Differentielle Optische Absorptions-Spektroskopie) ausgerüstet und für den wissenschaftlichen Einsatz vorgesehen. Mit diesem Forschungsflugzeug wurden in den Jahren 1991-1995 etwa 100 Meßflüge über Mitteleuropa und der europäischen Arktis durchgeführt und eine große Anzahl an Meßergebnisse gewonnen.

Die von den Meßinstrumenten ermittelten Daten wurden in den Vorgängerprojekten weitestgehend ausgewertet. In diesem Folgevorhaben wurden jedoch erheblich weiterreichende Auswertungen und Dateninterpretationen durchgeführt. Die dabei bearbeiteten wissenschaftlichen Fragestellungen wie beispielsweise Untersuchungen zur Denoxifizierung und Halogenaktivierung der Stratosphäre wurden vor allem durch Vergleiche der Datensätze mit Ergebnissen von photochemischen und/oder dynamischen Modellen untersucht und deren Resultate in 38 begutachteten Veröffentlichungen in internationalen Zeitschriften (bis heute) publiziert.

The depletion of the ozone layer in the lower and polar latitudes of the northern hemisphere – in particular during the winter half years – is an alarming process, because our living space is directly affected. Since at the end of the eighties this trend was verified, national as well as international research organisations decided to deeper investigate the processes, which are decisive responsible for this development. As part of this effort a research aircraft (Transall C-160) with three remote sensing instruments (LIDAR, LIght Detection and Ranging; MIPAS, Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding; DOAS, Differential Optical AbsorptionSpektroskopie) was equipped. Between 1991-1995 about 100 flights were performed with this research aircraft above Central Europe and the European Arctic and a large number of results was gained.

The data obtained from the measuring instruments were partly evaluated during the previous projects. However, in this succeeding project a considerably improved and further reaching evaluation and interpretation was performed. In particular by comparisons of the datasets with the results of photochemical and/or dynamical models the scientific questions (e.g. denoxification, halogen activation) were investigated and the results in 38 reviewed publications in international journals (up to now) published.

## **1.) Einleitung und Übersicht**

Der Abbau der Ozonschicht in den mittleren und den polaren Breiten der Nordhemisphäre - vor allem während Winterhalbjahre - ist ein besorgniserregender Vorgang, da unser Lebensraum direkt betroffen ist. Als zum Ende der achtziger Jahre diese Entwicklung zum ersten Male eindeutig nachgewiesen wurde, haben sich nationale sowie internationale Forschungsorganisationen entschlossen, die Prozesse näher zu untersuchen, die für diese Entwicklung maßgeblich sind. Als Teil dieser Anstrengungen wurde u.a. ein Forschungsflugzeug (Transall C-160) mit drei Fernerkundungsinstrumente (LIDAR, Light Detection and Ranging; MIPAS, Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding; DOAS, Differentielle Optische Absorptionsspektroskopie) ausgerüstet und für den wissenschaftlichen Einsatz vorgesehen. Mit diesem Forschungsflugzeug wurden in den Jahren 1991-1995 etwa 100 Meßflüge über Mitteleuropa und der europäischen Arktis durchgeführt (für eine Übersicht über die Flüge siehe die Tabellen in Kapitel 5) und eine große Anzahl an Meßergebnisse gewonnen.

Die von den Meßinstrumenten ermittelten Daten wurden in den Vorgängerprojekten weitestgehend ausgewertet. Wegen der zu kurzen Förderungsdauer der Vorgängervorhaben konnten aber nur Teilaspekte dieser Meßdaten vollständig ausgewertet und interpretiert werden. Daher wurde dieses Folgevorhaben beantragt und vom BMBF finanziert. Die dabei bearbeiteten wissenschaftlichen Fragestellungen sind summarisch in Kapitel 2 aufgeführt. Eine Zusammenfassung und Bewertung des Forschungsvorhaben findet sich in Kapitel 3. Eine detaillierte Übersicht der wissenschaftlichen Themen, die im Rahmen der Transallvorhaben bearbeitet wurden sind in Kapitel 4 aufgeführt. Kapitel 5 gibt schließlich zur Orientierung eine Übersicht über die Meßflüge und das Kapitel 6 enthält eine Liste der im Rahmen diese Vorhabens (und der Vorgängervorhaben) angefertigten Veröffentlichungen. Weitere Details des Forschungsvorhabens findet sich in den Teilberichten der beteiligten Institutionen (IUP, Universität Heidelberg; IMK, Forschungszentrum Karlsruhe; DLR, Oberpfaffenhofen; MPI-Chemie Mainz) in den Anhängen. Für Interessenten der detaillierten Darstellung der wissenschaftlichen Ergebnisse sei auf die bis heute angefertigten 38 begutachteten Veröffentlichung verwiesen, die in internationalen Zeitschriften erschienen sind

## **2.) Die Forschungsziele und Ergebnisse des Vorhabens**

Die Absicht des Forschungsvorhabens war die Meßergebnisse der einzelnen Instrumente nach unterschiedlichen Aspekten (s.u.) zu interpretieren, wobei ein Schwerpunkt in der Interpretation jener Meßdaten sein sollte, die von unterschiedlichen Meßinstrumenten gewonnen wurde. Wie die weiter unten aufgelistete Aufstellung zeigt, ist dies in hervorragender Weise gelungen. Im einzelnen wurden folgende Studien durchgeführt:

### **2.01 NO<sub>2</sub>-Messungen [Glatthor et al., 1998]**

In diesem Teilprojekt wurden u.a. die Breitenabhängigkeit der auf zahlreichen Meßflügen vom dem DOAS- und erstmalig von dem MIPAS Instrument gemessenen NO<sub>2</sub>-Säulen untereinander mit dreidimensionalen Modellrechnungen verglichen. Dabei zeigte sich das die erstmalig mit dem MIPAS-Instrument gemessenen NO<sub>2</sub> Säulen i.a. sehr gut mit den Messungen des DOAS Gerätes sowie den Modellrechnungen übereinstimmt.

### **2.02 Upwind/Downwind PSC-Beobachtung [Carlslaw et al., 1998]**

In diesem Teilprojekt wurden die hochaufgelösten PSC-Beobachtungen vom Januar 1995, die im Lee der skandinavischen Gebirgskette gemessen wurden, mit einem gekoppelten mesoska-

ligen Dynamik/Chemiemodell verglichen, wodurch das bisherige Bild von ‚Mountain-PSCs‘ entscheidend erweitert werden konnten.

### **2.03 Heterogene Bromchemie an dem stratosphärischem Hintergrundaerosol [Erle et al., 1998].**

Das Molekül OCIO konnte während mehrere Meßflüge außerhalb des Polarwirbels nachgewiesen werden. Bei einigen dieser Ereignisse konnte eindeutig gezeigt werden, daß diese Luftmassen nicht vom Polarwirbel stammen und auch nicht 10 Tage vorher durch polare stratosphärische Wolken prozessiert wurden. Hingegen zeigt die Simulation mit 1-D Modellrechnungen auf den untersuchten Luftmassentrajektorien, daß OCIO nur bei einer effizienten Hydrolyse des Moleküls BrONO<sub>2</sub>

### **2.04 Filamentierung am Polarwirbelrand [Flentje et al., 1999]**

Die mit dem LIDAR Gerät verschiedentlich beobachtete Filamentierung des Polarwirbelrandes (z.B. bei dem Flug am 27. 3. 1995) wurde mit einem Contour Advection Modell eingehender untersucht. Dabei konnten die Beobachtungen realitätsnah modelliert werden, was eine genaue Bestimmung des Luftmassenaustauschs über den Polarwirbelrand erlaubt.

Damit läßt sich der Einfluß der prozessierten Luftmassen des Polarwirbels auf die mittleren Breiten besser als bisher abschätzen.

### **2.05 Interpretation der DOAS Mondmessungen nach O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub> OCIO und OBrO [Erle et al., 1997]**

Die beiden fünf Transallflügen durchgeführten Mondmessungen wurden nach den Säulendichten von O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub> OCIO und OBrO ausgewertet. Für die ersten vier genannten Spurenstoffe wurden i.a. eine gute Übereinstimmung mit Messungen anderer Instrumente (z- Bsp. TOMS Satellit) oder photochemischen Modelrechnungen gefunden. Das Molekül OBrO konnte im Gegensatz zu den Ergebnissen einer französischen Gruppe bei den Mondmessungen während der Nacht nicht nachgewiesen werden. Aus unseren Messungen läßt sich daher auf eine Obergrenze von bestenfalls  $7.12 \cdot 10^{12}/\text{cm}^2$  schließen.

### **2.06 Interpretation der OCIO Messungen bei Zwielicht und während der Nacht [Erle et al., in prep.]**

Die während mehrerer Meßflüge gemessenen OCIO Säulendichten während des Abend- oder im Morgenzwielicht und während der Nacht wurden mit Hilfe eines 1-D Modells untersucht. Dabei zeigte sich, daß die gemessene OCIO Mengen bei Nacht - wie erwartet - äußerst stark der dem bisher noch recht ungenau bestimmten Ratenkoeffizienten BrO + ClO abhängen. Mit Hilfe der Messungen und dem Modell läßt sich der Bereich der Unsicherheiten des Ratenkoeffizienten stark einschränken. wodurch auch eine genauere Berechnung des Ozonverlustes durch den ozonabbauenden Kanal dieser Reaktion erst möglich wird.

### **2.07 Partitioning der NO<sub>y</sub> Verbindungen während eines Polarwinters [Pfeilsticker et al., 1998]**

Mit Hilfe der während eines Winterhalbjahres von den unterschiedlichen Fernerkundungsinstrumenten gemessenen hauptsächlichen NO<sub>y</sub> Verbindungen (NO<sub>2</sub>, ClONO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>) sowie einer Abschätzung der totalen NO<sub>y</sub> Menge aus einer Eichung der N<sub>2</sub>O Menge und der vom LIDAR gemessenen Aerosoloberkante konnten für vier Meßperioden im Winter 1994/95 idealtypische Situationen der NO<sub>y</sub> Verteilung des stratosphärischen Winterhalbjahres studiert werden. Das dabei abgeleitete Bild bestätigt die bisherigen Sicht der chemischen und physikalischen Prozesse der stratosphärischen Stickstoffverbindungen.

### **3.) Zusammenfassung und Bewertung:**

Im Rahmen des Vorhabens wurden einige neue wichtige Erkenntnisse über chemische und physikalische Prozesse der Ozonschicht gewonnen. Das Vorhaben war somit sehr erfolgreich. Für die sehr interessierten Details der im Rahmen dieses Vorhabens erzielten Forschungsergebnisse sei die Einzelberichten (siehe weiter) der beteiligten Forschungsgruppen bzw. den in Kapitel 5 aufgeführten wissenschaftlichen Veröffentlichungen verwiesen.

Weiterhin kann aus den hier gemachten Erfahrungen den Geldgebern nur empfohlen werden ähnlich strukturierte Vorhaben, die zuerst eine intensive Meßphase aufweisen bevor eine Dateninterpretation erfolgt, den Antragstellern genügend Zeit (und Förderung) für diese zweiten Phase zu kommen zu lassen.

## **4.) Übersicht über die mit dem Forschungsflugzeug Transall untersuchten wissenschaftlichen Fragestellungen**

### **1.) Diagnose des arktischen Polarwirbels**

- 1.1 Änderung der stratosphärische Chemie an der Polarwirbelgrenze
- 1.2 Variabilität der Spurenstoffe ( $O_3$ ,  $ClNO_3$ ,  $OCIO$ ,  $NO_2$ ,  $HNO_3$ , etc.) im polaren Winter
- 1.3 Zeitliche Entwicklung der polaren stratosphärischen Chemie während des Winters bzw. von Jahr zu Jahr ( 5 Winter)

### **2.) Fallstudien/Chemische Prozesstudien**

- 2.1 Upwind/downwind Studien an PSC-Feldern
- 2.2 Chloraktivierung durch heterogene Umwandlung  $ClNO_3$  in  $OCIO$
- 2.3 Denoxifizierung (Umwandlung von der  $NO_x$  Verbindungen in  $NO_y$ )
- 2.4 Denitrifizierung (Entfernung von  $HNO_3$  aus Gasphase)
- 2.5 Transport chloraktivierter,  $NO_x$  armer und  $ClNO_3$  reicher Luftmassen in mittlere Breiten
- 2.6 Bestimmung der lokalen Ozonverlustrate,
- 2.7 2-D-Detektion des Ozonverlustgebietes
- 2.8 Vermessung von PSC-Feldern
- 2.9 Untersuchung der 'frühen' Chloraktivierung durch vulkanisches Aerosol
- 2.10 Leewellenuntersuchungen, Untersuchung der physikalischen Phase stratosphärischen Aerosols
- 2.11 Sedimentation von stratosphärischen Aerosolpartikeln in die polare Troposphäre
- 2.12 Untersuchung des strat./trop. Austausches durch den polaren Jet
- 2.13  $OCIO$ -Bildung außerhalb des Polarwirbels, Heterogene Bromchemie
- 2.14 Das Budget der  $NO_y$  Verbindungen
- 2.15 Filamentbildung am Polarwirbelrand

### **3.) Hemisphärische Untersuchungen**

- 3.1 Breitenschnitte der Verteilung von  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $OCIO$ ,  $ClNO_3$ ,  $HNO_3$  und  $NO_3$  im nord-hemisphärischen Spätwinter
- 3.2 Transport von vulkanischen Aerosolen (Pinatubo)

### **4.) Vergleichsmessungen**

- 4.1 Vergleich von DOAS und MIPAS Ozonmessungen mit in-situ  $O_3$ -Sonden und dem TOMS-Instrument auf dem Nimbus 7 Satelliten
- 4.2 Vergleichsmessungen von MIPAS-Transall mit MIPAS - Boden, Ballon- , bzw. mit dem CLAES auf UARS-Satelliten
- 4.3 Vergleichsmessungen mit in-situ Ballonen (z Bsp. im Rahmen von Traverse)
- 4.4 Vergleich mit Lidar Boden- und Satellitenmessungen

## 5.) Übersicht über die TRANSALL-Flüge in den 5 arktischen Wintern 1990/91 bis 1994/95

In den folgenden Tabellen wird eine Übersicht über die Meßflüge des Forschungsflugzeuges Transall gegeben:

### 5.1.1 Winter 1990/91

Datum	Flugroute	Kommentar	Position d. Polarwirbels <sup>1</sup>
30.1.91	Manching, lokal	Testflug	
31.1.91	Manching, lokal	Testflug	
4.2.91	Manching, lokal	Testflug	
5.2.91	Manching - Andoya	Breitenschnitt	
6.2.91	Andoya - Jan Mayen		
7.2.91	Andoya - Søndre Strømfjord - Andoya		
9.2.91	Andoya - Keflavik		
10.2.91	Keflavik - Søndre Strømfjord - Andoya		
11.2.91	Bodenmessung		
12.2.91	Andoya - Manching		
2.4.91	Manching	Mond-Dirktlicht	
4.4.91	Südflug		
9.4.91	Manching - Wunsdorf - Andoya		
10.4.91	Andoya - 85°N/?°W - Andoya		
11.4.91	Andoya - Manching (Rückflug)		

### 5.1.2 Winter 1991/92

Datum	Flugroute	Kommentar	Position d. Polarwirbels
28.11.91	Manching, lokal	Testflug	außerhalb
3.12.91	Manching - Köln - Kiruna	Breitenschnitt	außerhalb
5.12.91	Kiruna - Keflavik/Island - Kiruna		außerhalb
8.12.91	Kiruna - Keflavik/Island - Kiruna		75±5°N (Randbereich)
10.12.91	Kiruna - 68°N/0°O - Kiruna		außerhalb
11.12.91	Kiruna - 70.5°N/18°O		außerhalb
13.12.91	Kiruna - Manching	Breitenschnitt	außerhalb
8.1.92	Manching - Hohn - Kiruna	Breitenschnitt	Flug über Randbereich
9.1.92	Kiruna - 65°N/7°O - 68°N/11°O - Kiruna	PSC's	53±2°N (innerhalb)
12.1.92	Kiruna - Ruisische Grenze - Kiruna	PSC's	62±5°N (innerhalb)
13.1.92	Kiruna - Ruisische Grenze - Norwegische Küste - Kiruna	PSC's	60±5°N (innerhalb)
14.1.92	Kiruna - 70°N/9°O - Kiruna	PSC's	63±5°N (innerhalb)
15.1.92	Kiruna - 65°N/10°O - Kiruna	PSC's	63±3°N (innerhalb)
16.1.92	Kiruna - 64°N/6°O - Kiruna		60±3°N (innerhalb)
17.1.92	Kiruna - Manching	Breitenschnitt	55±3°N (Randbereich)
29.1.92	Manching - Hohn - 65°N/12°O	Breitenschnitt	68±3°N (Randbereich)
30.1.92	Kiruna - 71°N/5°O Kiruna		Flug über Randbereich
31.1.92	Kiruna - 78°N/30°O Kiruna		innerhalb
1.2.92	Kiruna - 77°N/18°O - Kiruna		innerhalb
2.2.92	Kiruna - 76°N/24°O - Kiruna		innerhalb
3.2.92	Kiruna - Søndre Strømfjord/Grönland - Kiruna		65±5°N (Randbereich)
5.2.92	Kiruna - 61°N/14°O - Stavanger - Kiruna		innerhalb
7.2.92	Kiruna - Spitzbergen - Kiruna		innerhalb
9.2.92	Kiruna - 58°N/12°O (Südschweden) - Kiruna		innerhalb
10.2.92	Kiruna - 63°N/20°O (Finnland) - Kiruna		innerhalb
11.2.92	Kiruna - Søndre Strømfjord/Grönland - Kiruna		70±3°N (Randbereich)
13.2.92	Kiruna - 63°N/20°O - Kiruna		innerhalb
14.2.92	Kiruna - 80°N/7°O - Kiruna		Flug über Randbereich
16.2.92	Kiruna - 73°N/47°O (Novaja Semlja) - Kiruna		Flug über Randbereich

1

Die Angabe des Polarwirbelrands bezieht sich auf die 475 K-Isentrope.



17.2.92	Kiruna - Manching	Breitenschnitt	
28.2.92	Manching - Hohn - Kiruna	Breitenschnitt	Flug über Randbereich
29.2.92	Kiruna - 73°N/19°O - 64°N/21°O - Kiruna	Breitenschnitt	Flug über Randbereich
1.3.92	Kiruna - Søndre Strømfjord/Grönland - Kiruna		innerhalb
3.3.92	Kiruna - 68°N/59°O (Workuta) - Kiruna		innerhalb
4.3.92	Kiruna - 78°N/27°O (Spitzbergen) - Kiruna	Breitenschnitt	Flug über Randbereich
5.3.92	Kiruna - St.Morgan - 29°N/16°O (Las Palmas)	Breitenschnitt	außerhalb
7.3.92	Las Palmas - Kapverd. Inseln - Las Palmas	Breitenschnitt	außerhalb
8.3.92	Las Palmas - 60°N/18°O (Köln)	Breitenschnitt	außerhalb
9.3.92	51°N/7.5°O (Köln) - Kiruna	Breitenschnitt	Flug über Randbereich
11.3.92	Kiruna - 79°N/4°O	Breitenschnitt	Flug über Randbereich
12.3.92	Kiruna - 73.5°N/18°O (Spitzbergen)	Breitenschnitt	Flug über Randbereich
13.3.92	Kiruna - 59.5°N/10°O - 52°N/19°O - Manching	Breitenschnitt	außerhalb

### 5.1.3 Winter 1992/93

Datum	Flugroute	Kommentar	Position d. Polarwirbels
2.12.92	Manching - Manching	Testflug	außerhalb
4.12.92	Manching - Kiruna		75±5°N (außerhalb)
6.12.92	Kiruna - Kiruna	Mond-Direktlicht	68±2°N
8.12.92	Kiruna - 60°N/3°O - Manching		76±5°N (außerhalb)
27.1.93	Manching - Kiruna		Flug über Rand (60°N)
31.1.93	Kiruna - 75°N/30°O - Kiruna		76±4°N (innerhalb)
2.2.93	Kiruna - 59°N/10°O	Breitenschnitt	77±3°N (außerhalb)
4.2.93	Kiruna - Landsberg - Manching	Mond-Dirktlicht	68±3°N (außerhalb)
5.3.93	Manching - Hannover - Kiruna		Flug über Rand (60°±3°N)
7.3.93	Kiruna - 72°N/24°O - 78°N/7°W - Kiruna		Flug am Rand (48±3°N)
8.3.93	Kiruna - Wunstorf - Manching		45±3°N (innerhalb)
9.3.93	Manching - 47°N/5°O - 41°N/18°O (Thessaloniki)		37±3°N (außerhalb)
10.3.93	41°N/26°O (Thessaloniki) – Alicante/Spainien - 28°N/14°W (Las Palmas)		(36±2°N, für 90°SZW) (innerhalb)
12.3.93	Las Palmas - 49°N/12°O (Manching)		außerhalb
24.3.93	Manching - Kiruna		80±5°N (außerhalb)
25.3.93	Kiruna - 82°N/5°O (Spitzbergen) - Kiruna		72±3°N (Flug in Wirbel)
28.3.93	Kiruna - 82°N/30°O (Spitzbergen) - Kiruna		78±2°N (Flug in Wirbel)
29.3.93	Kiruna - 63°N/11°O - 51°N/9°O - Manching		79±3°N (außerhalb)

### 5.1.4 Winter 1993/94

Datum	Flugroute	Kommentar	Position d. Polarwirbels
30.11.93	Manching, lokal	Testflug; Mondlicht	außerhalb
22.1.94	Manching - Südschweden - Kiruna	Breitenschnitt	73±5°N (außerhalb)
25.1.94	Kiruna - 75.5°N/11°W - Kiruna	z.T. Mondlicht	68±4°N (innerhalb/Randbereich)
28.1.94	Kiruna - Nordsee - Manching	Breitenschnitt	58±2°N (Randbereich)
8.2.94	Manching - Südschweden - Kiruna	Breitenschnitt	80±4°N (außerhalb)
15.2.94	Kiruna - 85.5°N/9°O - Kiruna	Breitenschnitt	78±2°N (Randbereich)
16.2.94	Kiruna - Südschweden - Manching	Breitenschnitt	76±2°N (außerhalb)
11.3.94	Manching - Ungarn - Estland - Finnland - Kiruna	Breitenschnitt	71±3°N (außerhalb)
13.3.94	Kiruna - 76°N/30°O - 76°N/10°W - Kiruna		57±3°N (innerhalb)
16.3.94	Kiruna - Schottland - Niederlande - Manching	Breitenschnitt	68±2°N (Randbereich)

### 5.1.5 Winter 1994/95

Datum	Flugroute	Kommentar	Position d. Polarwirbels
9.11.94	Manching (67.8°N; 20.3°O), lokal	Testflug	außerhalb
13.12.94	Manching - Schweden - Kiruna		74°N (außerhalb)
15.12.94	Kiruna, lokal		72°N (außerhalb)
17.12.94	Kiruna - Spitzbergen - Kiruna	PSC's, Mondlicht	70°N (Randbereich)

20.12.94	Kiruna - 70°N/0°O - 58°N/0°O - Manching		Flug über Wirbelrand (63°N)
11.1.95	Manching - Norwegen - Kiruna		Flug über Wirbelrand (60°N)
12.1.95	Kiruna - 72°N/20°O - 65°N/15°O - Kiruna	PSC's	innerhalb
15.1.95	Kiruna, lokal über Skandinavien	PSC's	66°N (innerhalb)
17.1.95	Kiruna - Finnland - Polen - Manching	PSC's	Flug über Wirbelrand (62°N)
24.1.95	Manching - Hohn - Kiruna		49°N (innerhalb)
27.1.95	Kiruna - 65°N/18°O - Kiruna		50°N (innerhalb)
30.1.95	Kiruna - 69.5°N/2°O - Kiruna	"ZEBRE" - Flug	60°N (innerhalb)
31.1.95	Kiruna - 57°N/23°O - Kiruna	Ballonbegleitung ("ASTRID")	61°N (Randbereich)
3.2.95	Kiruna - 74.5°N/45°O (Riga)- Kiruna	Ballonbegleitung ("BONBON")	59°N (innerhalb)
5.2.95	Kiruna - 74°N/45°O - Kiruna	FALCON-Begleitflug	75°N (Randbereich/innerhalb)
7.2.95	Kiruna - Finnland - Manching		70°N (außerhalb)
21.3.95	Manching - Polen - Finnland - Kiruna		Flug über Wirbelrand (56°N)
22.3.95	Kiruna - 73°N/30°O - 73°N/18°O - Kiruna		53±2°N (innerhalb)
26.3.95	Kiruna - 66°N/29°O - Kiruna		63±2°N (innerhalb)
27.3.95	Kiruna - Norwegen - Manching		70±5°N (außerhalb)
4.4.95	Manching - Norwegen - Kiruna		Flug über Wirbelrand (66°N)
5.4.95	Kiruna - 80°N/30°O - Kiruna		63±2°N (innerhalb)
8.4.95	Kiruna - Schweden - Manching		Flug über Wirbelrand (63°N)

## **6.) Liste der im Rahmen des Vorhabens und in den Transall Vorgängervorhaben erschienenen Veröffentlichungen**

(Anzahl der begutachteten internationalen Veröffentlichungen (37), Dipl./Dok. Arbeiten, Konferenz Proceedings etc.(39))

1. Barth, V., and A. Zahn, The oxygen isotope composition of carbon dioxide in the middle atmosphere, *J.Geophys.Res.*, 102, 12995-13007, 1997.
2. Blom, C.E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, and M. Höpfner, Airborne measurements during the European arctic stratospheric ozone experiment: column amounts of HNO<sub>3</sub> and O<sub>3</sub> derived from FTIR emission sounding, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1351-54, 1994
3. Blom, C.E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, M. Höpfner, W. Kimmig, C. Piesch, and A.M. Lee, MIPAS-Transall observations on the variability of ClONO<sub>2</sub> during the Arctic winter of 1994/95, Proc. 3.European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1995.
4. Blom, C.E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, M. Höpfner, and C. Piesch, Spatial and temporal variability of ClONO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, and O<sub>3</sub> in the Arctic winter of 1992/93 as obtained by airborne infrared emission spectroscopy, *J. Geophys. Res.*, 100, 9101-9114, 1995
5. Blom, C.E., M. Höpfner and C. Weddigen, Correction of phase anomalies of atmospheric emission spectra by the double-differencing method, *Appl. Opt.*, 35, 2649-2652, 1996.
6. Brandtjen, R., T.Klüpfel, D.Perner, and B.M.Knudsen, Airborne measurements during the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment: Observation of OCIO, *Geophys.Res. Lett.*, 21, 1363-1366, 1994
7. Brandtjen, R., Aufbau eines flugzeuggetragenen UV-Spektrometers und dessen Einsatz bei der internationalen Ozonforschungskampagne EASOE, Dissertation, Universität Mainz, 1994
8. Buggle, D., Ableitung von Information über das Vertikalprofil von Spurenstoffen aus MIPAS-FT-Spektren, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, 1995.
9. Carslaw, K.S., M.Wirth, A.Tsias, B.P.Luo, A.Dörnbrack, M.Leutbecher, H.Volkert, W.Renger, J.T.Bacmeister, E.Reimer, and T.Peter, Increased stratospheric ozone depletion due to mountain-induced atmospheric waves, *Nature*, 675-678, 1998
10. Carslaw, K.S., M.Wirth, A.Tsias, B.P.Luo, A.Dörnbrack, M.Leutbecher, H.Volkert, W.Renger, J.T.Bacmeister, and T.Peter, Particle microphysics and chemistry in remotely observed mountain polar stratospheric clouds, *J. Geophys. Res.*, 103, 5785-5796, 1998
11. Chipperfield, M-P., J.A. Pyle, C.E. Blom, N. Glatthor, M. Höpfner, T. Gulde, C. Piesch, and P. Simon, The variability of ClONO<sub>2</sub> and HNO<sub>3</sub> in the Arctic polar vortex: Comparison of Transall Michelson interferometer for atmospheric sounding measurements and three-dimensional model results, *J. Geophys. Res.*, 100, 9115-9129, 1995
12. Dameris M., M.Wirth, W.Renger, and V.Grewe, Definition of the Polar Vortex Edge by Potential Vorticity: A Comparison with Aerosol Measurements, *Beitr. Phys. Atmosph.*, 68, 113-119, 1995
13. Erle, F., K.Pfeilsticker, and U.Platt, On the influence of tropospheric clouds on zenith-scattered-light measurements of stratospheric species, *Geophys.Res. Lett.*, 22, 2725-2728, 1995
14. Erle, F., DOAS-vis Messungen auf dem Forschungsflugzeug Transall in den arktischen Wintern 93/94 und 1994/95, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1995.
15. Erle, F., K.Pfeilsticker, and U.Platt, Transall DOAS-measurements of nighttime column

- abundances of stratospheric O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, OCIO, and NO<sub>3</sub>, Proc. 4.European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1997.
16. Erle, F., A.Grendel, D.Perner, K.Pfeilsticker, and U.Platt, Evidence of heterogeneous bromine chemistry on cold stratospheric sulfate aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 4329-4332, 1998.
  17. Erle, F., Untersuchungen zur Halogenaktivierung der winterlichen arktischen Stratosphäre anhand flugzeuggestützter spektroskopischer Messungen, Dissertation, Universität Heidelberg, 1999.
  18. Flentje, H., M.Wirth, and W. Renger, Comparison of Airborne Lidar measurements with high resolution tracer transport models, Proc. of 19<sup>th</sup> international Laser-Radar Conference, Annapolis, USA, 1998
  19. Flentje, H., M.Wirth, and W. Renger, Comparison of airborne Lidar measurements with contour advection simulations, *J. Geophys. Res.*, to be submitted, 1999.
  20. Foltescu, V.L. and A. Zahn, Aerosols used as tracers for stratosphere-troposphere exchange in the Arctic, *Atmos. Environ.* 29, 15, 1777-1784, 1995.
  21. Glatthor, N., C.E.Blom, H.Fischer, T.Gulde, and C.Piesch, Interpretation of HNO<sub>3</sub> and O<sub>3</sub> burdens, observed in winter 1993/94 on flights across the Arctic vortex edge, Proc. 3.European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1995
  22. Glatthor, N., C.E. Blom, T. Blumenstock, H. Fischer, T. Gulde, M. Höpfner, W. Kimmig, C. Piesch, W. Bell, B. Galle, and M. Wirth, MIPAS-Transall observations of the variability of ClONO<sub>2</sub> during the Arctic winter of 1994/95, *J.Atmos.Chem*, 30, 1, 81-101, 1998
  23. Glatthor, N., C.E. Blom, T.v. Clarmann, H. Fischer, T. Gulde, C. Piesch, F. Erle, K. Pfeilsticker, M.P. Chipperfield, A. Lee, and J. Pyle, Airborne remote sensing of NO<sub>2</sub> in the Arctic winter of 1994/95 and comparison with a three-dimensional chemical transport model, *J. Geophys. Res.*, 103, 13.315-13.326, 1998.
  24. Glatthor, N., C.E. Blom, H. Fischer, M.P. Chipperfield, A.M. Lee, and J.A. Pyle, Comparison of MIPAS-FT Observations of HNO<sub>3</sub>, ClONO<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> in Winter 1994/95 with SLIMCAT Model Calculations, Proc. 4.European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1997
  25. Grendel, A., A.Grund, and D.Perner, Transall DOAS-measurements of stratospheric OCIO, BrO, NO<sub>2</sub> and O<sub>3</sub> in winter 1994/95, Proc. 3.European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1995
  26. Grendel, A., Flugzeuggetragene Messungen stratosphärischer Spurenstoffe mittels DOAS in den Wintern 1992/93 bis 1994/95, Dissertation, Universität Mainz, 1997
  27. Grund, A., A.Grendel, R.Brandtjen, D.Perner, T.Klüpfel, W.Renger, and M.Wirth, Halogenoxide observations in the presence of PSCs from the Transall, Proc. 4.European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1997
  28. Grund, A., T.Klüpfel, A.Grendel, B.Krug, and D.Perner, Ozone depletion potential from stratospheric OCIO and BrO observations during the arctic winters 1992-96 and the comparison with observed ozone columns, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 209-212, 1998
  29. Gulde, T., C.Piesch, C.E.Blom, H.Fischer, F.Fergg, and G.Wildgruber, The airborne MIPAS infrared emission experiment, Proc. of the 1<sup>st</sup> International Airborne Remote Sensing Conf. and Exhibition, Hrsg. Environm. Res. Inst. of Michigan, Ann Arbor, Vol. II, 301-311, 1994
  30. Helmling, M., Modellierung von photochemischen Prozessen entlang von Luftmassentrajektorien im arktischen Frühjahr, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1994
  31. Höpfner, M., C.E.Blom, H.Fischer, N.Glatthor, T.Gulde, W.Kimmig, C.Piesch, and A.M.Lee, MIPAS-Transall observations on the condensation of HNO<sub>3</sub> during the Arctic winter of 1994/95, Proc. 3.European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, Septem-

- ber 1995
32. Höpfner, M., C.E. Blom, T. Blumenstock, H. Fischer, N. Glatthor, and T. Gulde, Evidence for the removal of gaseous  $\text{HNO}_3$  inside the Arctic polar vortex in January 1992, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 149-152, 1996
  33. Höpfner, M., C.E. Blom, H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, C. Piesch, W. Renger, and M. Wirth,  $\text{HNO}_3$  and PSC measurements from the TRANSALL: Sequestering of  $\text{HNO}_3$  in the winter of 1994/95, *J. Atmos. Chem.*, 30, 1, 61-79, 1998
  34. Höpfner, M., Das flugzeuggetragene Fernerkundungsexperiment MIPAS-FT: Auswertung und Interpretation der arktischen Meßkampagnen 1991/92 und 1992/93, Dissertation, Universität Karlsruhe, 1994.
  35. Kimmig, W., Auswirkung von Vibrationen auf die Funktionsfähigkeit des MIPAS-FT. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, 1995.
  36. Pfeilsticker, K., und M. Helmling, Ozonverlust in der Stratosphäre, Die Rolle der Halogenoxide im Spätwinter, *Phys. in uns. Zeit*, 25, 6, 1994
  37. Pfeilsticker, K., and U. Platt, Airborne measurements during the Arctic stratospheric experiment: Observation of  $\text{O}_3$  and  $\text{NO}_2$ , *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1375-1378, 1994.
  38. Pfeilsticker, K., F. Erle, M. Helmling, and U. Platt, Results of the DOAS-vis measurements from the Transall obtained during SESAME winter 1994/95, Proc. 3. European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1995
  39. Pfeilsticker, K., F. Erle, O. Funk, T. Wagner, and U. Platt, Can Enhanced Tropospheric Photon Path Lengths Explain the Anomalous Cloud Absorption Phenomenon?, Proc. 3. European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1995
  40. Pfeilsticker, K., F. Erle, U. Platt, C.E. Blom, and W. Renger, Aircraft-borne measurements of the  $\text{NO}_2$ ,  $\text{HNO}_3$ , and  $\text{ClNO}_3$  partitioning during the Arctic winters 1991-1995, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 567-570, 1998
  41. Pfeilsticker, K., C.E. Blom, R. Brandtjen, H. Fischer, N. Glatthor, A. Grendel, T. Gulde, M. Höpfner, D. Perner, Ch. Piesch, U. Platt, W. Renger, J. Sessler, and M. Wirth, Aircraft-borne Detection of the Stratospheric Column Amounts of  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{OCIO}$ ,  $\text{ClNO}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ , and Aerosols around the Arctic Vortex ( $79^\circ\text{N}$  to  $39^\circ\text{N}$ ) during Spring 1993, 1. Observational data, *J. Geophys. Res.*, 102, 10801-10814, 1997.
  42. Pfeilsticker, K., F. Erle, and U. Platt, Absorption of solar radiation by atmospheric  $\text{O}_4$ , *J. Atmos. Sci.*, 1997
  43. Pfeilsticker, K., F. Erle, and U. Platt, Observation of the stratospheric  $\text{NO}_2$  latitudinal distribution in the northern winter hemisphere, *J. Atmos. Chem.*, 32, 101-120, 1999
  44. Pfeilsticker, K., F. Erle, O. Funk, L. Marquard, T. Wagner, and U. Platt, Optical path modifications due to tropospheric clouds: Implications for zenith scattered sky measurements of stratospheric gases, *J. Geophys. Res.*, 103, 25323-25335, 1998.
  45. Platt, U. und K. Pfeilsticker, Ozonforschung in der arktischen Stratosphäre, Erste Ergebnisse der Transall-Kampagne im Winter 1991/92, *Phys. Blätter*, 48, 6, 460 - 462, 1992
  46. Pyle J.A., M.P. Chipperfield, I. Kilbane-Dawe and A. M. Lee, Richard M. Stimpfle and Daniel Kohn, Wolfgang Renger, Joe W. Waters: Early modelling results from the SESAME and ASHOE Campaigns, *Faraday Discuss.*, 100, 371-387 1995
  47. Pyle J. A., Martyn P. Chipperfield, Iarla Kilbane-Dawe, Adrian M. Lee, Richard M. Stimpfle, Daniel Kohn, Wolfgang Renger, Joe W. Waters: The Influence of Polar Processes on Middle Latitudes: Case Studies Using SESAME, ASHOE and UARS Data, International Conference on Ozone in the Lower Stratosphere, Halkidiki, Greece, Conference abstracts, 192, 1995
  48. Renger W., Ehret G., Moerl P: Airborne Lidar for Atmospheric Research in the Arctic 15th ILRC Conference Abstracts, Tomsk S 74 - 76, 1990

49. Renger W., Ehret G., Moerl P., Wirth M.: Airborne Lidar Measurements of Stratospheric Aerosols during the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment (EASOE), 16th International Laser Radar Conference, Cambridge, Mass. USA, Conference Abstracts, 289-290, 1992
50. Renger W., Wirth M.: Evidence of Large Scale Ozone Depletion Within the Arctic Polar Vortex 94/95 Based on Airborne Lidar Measurements, XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila, Italy, 12 -21 September 1996, Conference Abstracts 436, 1996
51. Renger W., and M.Wirth, The Distribution of Aerosols in the Arctic Stratosphere during Three Winters after the Eruption of Mt. Pinatubo, 17th International Laser Radar Conference, Sendai, Japan, Conference Abstracts, 424-425, 1994.
52. Schlipper, R., Analyse der thermischen Eigenemission der optischen Komponenten des MIPAS-Flugzeugexperiments, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, Mai 1994.
53. Sessler, J., DOAS-vis Messungen auf dem Forschungsflugzeug Transall im arktischen Winter 1992/93, Diplomarbeit an der Universität Heidelberg, 1993.
54. Sessler, J., The arctic winter stratosphere: A modelling and data study; PhD thesis Univ. of Cambridge, 1996.
55. Sessler, J., K.Pfeilsticker, and U.Platt, Aircraft-borne DOAS-vis measurements during the Arctic Winter 1992/93, *Annales Geophysicae*, Supplement III to Volume 11, 1993
56. Sessler, J., K.Pfeilsticker, U.Platt, M.P.Chipperfield, and J.Pyle, Comparison of aircraft-borne DOAS-vis measurements and 3D model results, *Annales Geophysicae*, Supplement III to Volume 12, 1994
57. Sessler, J., M.P.Chipperfield, and J.Pyle, 3-D model results in comparison with Transall data during Arctic stratospheric winters 1992/93 and 1993/94, *Annales Geophysicae*, Supplement III to Volume 13, 1995
58. Wagner, T., K., F. Erle, L. Marquard, C. Otten, K. Pfeilsticker, T. Senne, J. Stutz, and U. Platt, Cloudy Sky Optical Paths as derived from DOAS Observations, *J. Geophys. Res.*, 103, 25307 - 25321, 1998.
59. Wirth, M., Renger, W., Ehret, G.: Airborne DIAL Remote Sensing of the Arctic Ozone Layer, Richard J.Becherer, Christian Werner, Editors, *Proc. SPIE* 1714, 234 - 237, 1992
60. Wirth M., G. Ehret, W. Renger, P. Mörl: LIDAR-Sondierung der arktischen Stratosphäre zur Bestimmung von Polar Stratosphärischen Wolken PSC's, Aerosol und Ozon, *Laser in der Umweltmeßtechnik*, München, 21.-25.6.93 (ed. C. Werner, H. Waidelich) Springer - Verlag, ISBN 3-540-5744 3-3, 45-47, 1993.
61. Wirth M., G.Ehret, P.Mörl, and W.Renger, Two Dimensional Stratospheric Aerosol Distribution during EASOE, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 13, 1287-1290, 1994
62. Wirth M., W. Renger Correlative PSC, Aerosol and Ozone Measurements during the Arctic Winter with an Airborne LIDAR, International Conference on Ozone in the Lower Stratosphere, Halkidiki, Greece, Conference abstracts, 240, 1995
63. Wirth M., W. Renger: Evidence of Large Scale Ozone Depletion within the Arctic Polar Vortex 94/95 Based on Airborne Lidar Measurements, Air pollution research report 56. Proc. of 3<sup>rd</sup> European workshop 18-22.9.1995, Schliersee, published by EC, ISBN 92-827-5722-6, pp.580-585, 1996
64. Wirth, M., and W.Renger, Evidence of large scale ozone depletion within the arctic polar vortex 94/95 based on airborne lidar measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 813-816, 1996
65. Wirth M., Wolfgang Renger: Airborne Lidar Observations of Ozone in the Arctic Winter 1994/95, *Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, Selected Papers of the 18th International Laser Radar Conference, Berlin 1996, , ISBN 3-540-61887-2, 517-520, Eds.: A. Ansmann, R. Neuber, P. Rairaux, U. Wandinger, Springer 1997
66. Wirth M., V. Weiß, W. Renger: Measurements of PSCs During the APE/POLECAT

- Campaign, European workshop 22-26.9.1997, Schliersee, published by the CEC, p.54, 1997
67. Wirth M., V. Weiß, W. Renger, A. Dörnbrack, M. Leutbecher, H. Volkert, A. Tsias, K.S. Carslaw, Th. Peter: Model Guided Lagrangian Observation and Simulation of Mountain Polar Stratospheric Clouds, *J. Geophys. Res.*, in press 1999
  68. Weddigen, C., C.E. Blom, and M. Höpfner, Phase corrections for the emission sounder MIPAS-FT, *Appl. Opt.*, 32, 24, 4586-4589, 1993.
  69. Zahn, A., *Der Tracertransport in der Tropopausenregion*, Dissertation, Universität Heidelberg, 1995.
  70. Zahn, A., V. Barth, K. Pfeilsticker, and U. Platt, In-situ potential vorticity and ozone as tracers for stratospheric-tropospheric exchange, in: *Polar stratospheric ozone, Air pollution research report 56*, Proceedings of the third European workshop, 18-22 September 1995, Schliersee, Germany, 56-60, 1996
  71. Zahn, A., V. Barth, R. Neubert, K. Pfeilsticker, and U. Platt, In-situ HDO, H<sub>2</sub><sup>18</sup>O, <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, and C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O measurements to study PSC-sedimentation and isotope exchange reactions in the stratosphere, in: *Polar stratospheric ozone, Air pollution research report 56*, Proceedings of the third European workshop, 18-22 September 1995, Schliersee, Germany, 61-66, 1996
  72. Zahn, A., V. Barth, K. Pfeilsticker, and U. Platt, Deuterium, Oxygen-18, and Tritium as tracers for water vapour transport in the lower stratosphere and tropopause region, in press, *J.Atmos.Chem.*, 25-47, 1998
  73. Zahn, A., V. Barth, and U. Platt, Atmospheric water vapour transport and isotope exchange reactions using upper tropospheric HDO, HTO, H<sub>2</sub><sup>18</sup>O, <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, and C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O measurements, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 639-642, 1998
  74. Zahn, A., R. Neubert, and U. Platt, Fate of long-lived trace species near the northern hemispheric tropopause, Part I: carbon dioxide, methane, ozone, sulphur hexafluoride, *J.Geophys.Res.*, in press, 1999
  75. Zahn, A., Evidence for a mixing layer above the extratropical tropopause based on ozone (O<sub>3</sub>), stratospheric tracer (SF<sub>6</sub>) ages and water vapor isotope (D, T) tracers, *J.Geophys.Res.*, (accepted), 1999.
  76. Zahn, A., K. Pfeilsticker, and U. Platt, A simple airborne technique for determining potential vorticity at high resolution, *J.Appl.Meteorol.*, (submitted) 1999.
  77. Zahn, A., V. Barth, K. Pfeilsticker, and U. Platt, Airborne high-resolution ozone and potential vorticity to study stratospheric-tropospheric exchange, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 183-186, 1998
  78. Zahn, A., V. Barth, and U. Platt, Atmospheric water vapour transport and isotope exchange reactions using upper tropospheric HDO, HTO, H<sub>2</sub><sup>18</sup>O, <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, and C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O measurements, reviewed paper, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 639-642, 1998
  79. Zahn, A., R. Neubert, M. Maiss, and U. Platt, Fate of long-lived trace species near the northern hemispheric tropopause, 2: The isotopic composition of carbon dioxide (<sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>, and C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O), *J.Geophys. Res.*, 104, 13923 – 13943, 1999

## **Ozonforschungsprogramm**

Schlußbericht des Instituts für Meteorologie und  
Klimaforschung der Universität Karlsruhe  
(Auftragnehmer des Instituts für Umweltphysik, Universität Heidelberg)  
zum Forschungsvorhaben

### **Erweiterte Interpretation der mit den Transall- Fernerkundungsgeräten (LIDAR, MIPAS, DOAS) in den arktischen Winterhalbjahren 1990 - 1995 gewonnenen Datensätze**

gefördert durch

Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft,  
Forschung und Technologie

mit dem Vorhabenskennzeichen

01 LO9531/0

Projektleiter: Priv.-Doz. Dr. C.E. Blom

August 1999

---

Institut für Meteorologie und Klimaforschung  
Universität Karlsruhe  
Postfach 3640  
76021 Karlsruhe

---



# **Inhaltsverzeichnis**

- 1. Kurze Darstellung zu Aufgabenstellung, Voraussetzungen, Planung und Ablauf des Vorhabens und Zusammenarbeit mit anderen Stellen**
  - 1.1. Aufgabenstellung**
  - 1.2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde**
  - 1.3. Planung und Ablauf des Vorhabens**
  - 1.4. Zusammenarbeit mit anderen Stellen**
  
- 2. Eingehende Darstellung der Ergebnisse**
  - 2.1. Lokale Kondensation von  $\text{HNO}_3$  in Januar 1992**
  - 2.2. Großräumige Kondensation von  $\text{HNO}_3$  im Winter 1994/1995**
  - 2.3. Variabilität von  $\text{ClONO}_2$  im Winter 1994/1995**
  - 2.4. Zeitliche und räumliche Variabilität von  $\text{NO}_2$  im Winter 1994/1995**
  - 2.5. Ableitung von Information über das Vertikalprofil von  $\text{HNO}_3$**
  
- 3. Voraussichtlicher Nutzen, Verwertbarkeit der Ergebnisse, Publikationen usw.**
  
- 4. Veröffentlichungen**
  - 4.1. Veröffentlichungen in Zeitschriften**
  - 4.2. Veröffentlichte Tagungsbeiträge**
  - 4.3. Doktorarbeiten**
  - 4.4. Diplomarbeiten**

## **1. Kurze Darstellung zu Aufgabenstellung, Voraussetzungen, Planung und Ablauf des Vorhabens und Zusammenarbeit mit anderen Stellen**

### **1.1. Aufgabenstellung**

In den Jahren 1990 – 1995 wurden zwei Vorhaben unter gleichem Namen "Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung: Flugzeugexperiment TRANSALL (MIPAS-FT)" vom BMBF mit den Förderkennzeichen 01VOZ30A8 und 01LO9218/2 gefördert. Das Ziel der Vorhaben war die Fernerkundung von Säulengehalten stratosphärischer Spurengase ( $O_3$ ,  $HNO_3$ ,  $ClONO_2$ , etc.), die für die Ozonchemie und insbesondere für eine mögliche Ozonzerstörung in der Arktis relevant sind. Durch den Einsatz des Trägerflugzeugs TRANSALL sollte Information über die horizontale Verteilung von Spurengasen gewonnen werden. Als Meßgerät wurde ein gekühltes Fourier-Transformations-Spektrometer eingesetzt, das die thermische Emission der atmosphärischen Spurengase gegen den kalten Hintergrund des Welt-raums im infraroten Spektralbereich mit hoher spektraler Auflösung erfaßt [15]. Diese Methode erlaubt kontinuierliche Messungen unabhängig vom Sonnenstand, also auch in der Polarnacht. Auswertung bzw. Interpretation der Meßdaten war bereits Bestandteil der Vorhaben.

Die Förderung des IMK im Rahmen des Vorhabens "Erweiterte Interpretation der mit den Transall-Fernerkundungsgeräten (LIDAR, MIPAS, DOAS) in den Arktischen Winterhalbjahren 1990 – 1995 gewonnenen Datensätze" bezweckte:

- (i) die Auswertung des Spurengases  $NO_2$  aus bereits gemessene Daten
- (ii) Transall-interne Vergleiche für Spurengase, die von mehreren Experimenten gemessen wurden, sowie Vergleiche mit bodengebundenen, Ballon-, Flugzeug- oder Satellitenexperimenten.

Neben diesen technischen Aspekten, die Validierung und Harmonisierung der Datensätze bezweckten, sollten

- (iii) wissenschaftliche Ziele, insbesondere zur PSC-Bildung, zur Chloraktivierung und zur Denoxifizierung bzw. zum  $NO_y$ -Budget im Vordergrund stehen.

### **1.2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde**

Im Winter 1994/1995 war die polare Stratosphäre extrem kalt. Zwischen dem 10. Dezember 1994 und dem 10. Februar 1995 waren große Gebiete des 50 hPa-Niveaus ständig unterhalb der PSC-I-Temperatur, zwischen Mitte Dezember und Mitte Januar sogar unterhalb der PSC-II-Schwelle ( $<188$  K), was umfangreiche heterogene Chemie ermöglichte. Erst ab Mitte März waren die Temperaturen generell zu hoch zur PSC-Bildung. In diesem Winter wurden zwischen Dezember 1994 und April 1995 im Rahmen der dritten Phase von SESAME fünf Transall-Kampagnen mit insgesamt 22 Flüge durchgeführt. Wegen der großen Zahl der Flüge und der besseren räumlichen Auflösung von MIPAS-FT lag am Anfang des Vorhabens ein sehr umfangreicher Satz von Rohdaten vor.

### **1.3. Planung und Ablauf des Vorhabens**

Im folgenden sind die wesentlichen Meilensteine des Vorhabens aufgeführt:

Oktober 1995	Einreichung des Antrags
April 1996	Bewilligung des Vorhabens
April 1996 – März 1998	Förderung des IMK als Auftragnehmer

### **1.4. Zusammenarbeit mit anderen Stellen**

Innerhalb des Vorhabens existierte wegen der sich ergänzenden Daten und wegen des gegenseitigen Vergleichs der Meßergebnisse eine Zusammenarbeit mit den Forschungsgruppen des DOAS-Experiments (MPI-Mainz und Universität Heidelberg) [6, 9, 17] und des Lidarexperiments (DLR Oberpfaffenhofen) [5, 8, 9, 17].

Bereits für frühere Vorhaben existierte eine wissenschaftliche Zusammenarbeit des IMK mit der Universität von Cambridge. Erstmals wurde das Cambridger CTM TOMCAT zur Interpretation der im Winter 1992/1993 gemessenen MIPAS-Daten [3] verwendet [4]. Die Zusammenarbeit mit der Universität Cambridge wird durch weitere gemeinsame Veröffentlichungen [6, 11, 13, 16] dokumentiert.

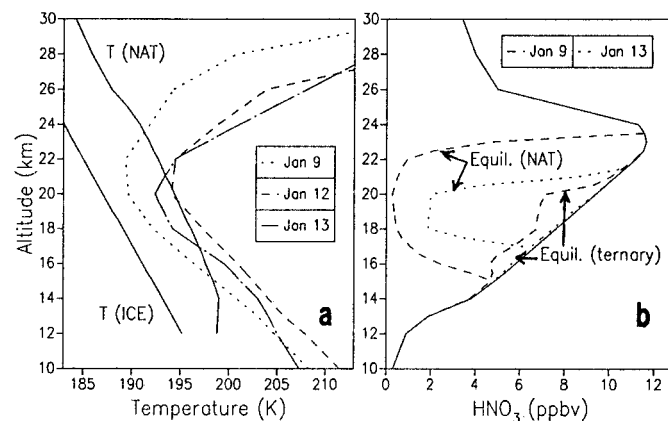
## 2. Eingehende Darstellung der Ergebnisse

### 2.1. Lokale Kondensation von $\text{HNO}_3$ in Januar 1992

Auf einem Flug am 9. Januar 1992 wurden von MIPAS westlich der norwegischen Küste ungewöhnlich niedrige Säulengehalte gasförmiger Salpetersäure gemessen. Aus dieser Beobachtung konnte abgeleitet werden, daß ungefähr 40% der Gesamtsäule von  $\text{HNO}_3$  aus der Gasphase entfernt worden war. Unter der Voraussetzung, daß dieser Anteil in Polaren Stratosphärenwolken kondensiert war, wurden Gleichgewichtsrechnungen für zwei unterschiedliche Annahmen durchgeführt:

(a)  $\text{HNO}_3$  war in flüssigen ternären Tröpfchen von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}/\text{HNO}_3$  gelöst, oder  
 (b) es befand sich in der festen Phase von NAT (Salpetersäure-Trihydrat).

Das Ergebnis war eindeutig (Abbildung 1). Im ersten Fall waren lediglich 8% aus der Gasphase entfernt, während unter (b) 45% der gasförmigen Salpetersäure kondensiert war [7, 18].



**Abbildung 1.** (a) ECMWF-Temperaturprofile am Ort dreier Messungen von MIPAS-FT im Januar 1992. Zusätzlich sind die Gleichgewichtstemperaturen von NAT und Eis eingezeichnet. (b)  $\text{HNO}_3$ -Gleichgewichtsprofile über NAT und ternärer Lösung am Ort zweier Messungen. Das Referenzprofil (—) stammt aus einer unabhängigen Messung des MIPAS-Ballonexperiments vom 13. Januar 1992 bei Temperaturen oberhalb der PSC-Schwelle.

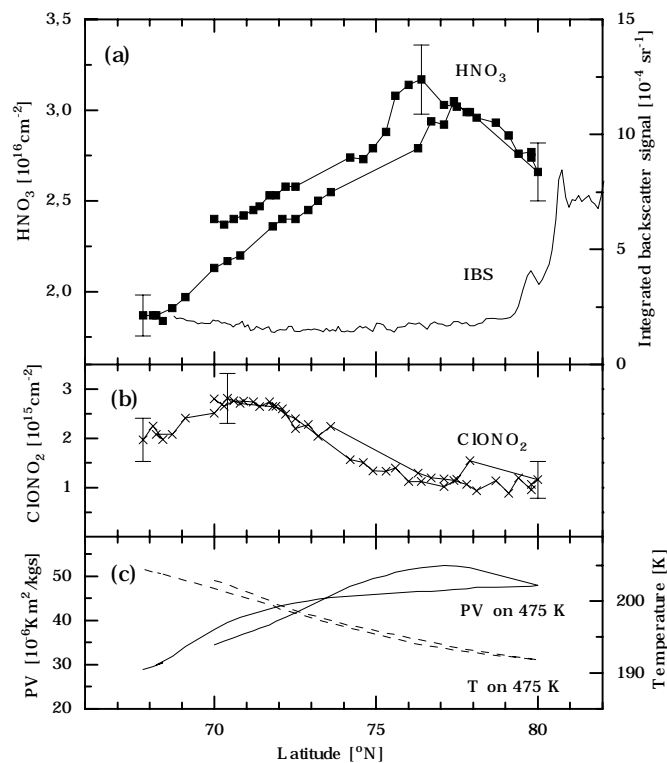
Die Existenz von PSCs im Meßgebiet wurde durch Lidar-Beobachtungen von Andoya aus bestätigt. Dabei wurden im Höhenbereich von 18-22 km feste Teilchen gefunden, was das Vorhandensein von NAT wahrscheinlicher macht. Von ungewöhnlich niedrigen  $\text{HNO}_3$ -Werten im Zusammenhang mit PSCs am Tag und Ort unserer Messung wurde später auch in einer Veröffentlichung von amerikanischen Wissenschaftlern berichtet, die  $\text{HNO}_3$  aus UARS-Daten abgeleitet hatten.

### 2.2. Großräumige Kondensation von $\text{HNO}_3$ im Winter 1994/1995

Während der beiden relativ warmen Winter 1992/1993 [18] und 1993/1994 [12] konnten keine außergewöhnlich niedrigen  $\text{HNO}_3$ -Säulengehalte in der arktischen Stratosphäre festgestellt werden. Dies änderte sich jedoch im folgenden Winter in dem die Stratosphäre extrem niedrige Temperaturen aufwies. Auf Flügen am 17. De-

zember 1994 und vor allem am 12. Januar 1995 konnte von MIPAS erstmals eine großräumige Reduktion der  $\text{HNO}_3$ -Säulengehalte gemessen werden. Diese korreliert mit dem Auftreten von PSCs, die gleichzeitig mit dem OLEX (Ozone Lidar EXperiment) des DLR auf der Transall beobachtet wurden [8, 16, 17].

Bei einem Flug von Kiruna in den Polarwirbel und zurück am 17.12.1994 (Abbildung 2) zeigte sich – bedingt durch Absinken im Wirbel und Konversion von Stickoxiden zu  $\text{HNO}_3$  – zunächst die übliche Zunahme der  $\text{HNO}_3$ -Säulen. Ab  $76^\circ\text{N}$  erfolgte jedoch eine Abnahme von  $\text{HNO}_3$ , korreliert mit einer Zunahme des LIDAR-Rückstreusignals [8, 16].



**Abbildung 2.** Aus MIPAS Messungen vom 17.12.1994 abgeleitete Säulengehalte von  $\text{HNO}_3$  (a) und  $\text{ClONO}_2$  (b). In (a) ist zusätzlich das zwischen 14 und 25km integrierte Rückstreusignal (IBS) des OLEX Lidars eingezeichnet, (c) zeigt die potentielle Wirbelstärke und die Temperatur auf der 475K Isentropen am Ort der Messung.

Ein noch wesentlich ausgeprägteres Verhalten zeigten die beiden Flüge am 11. und 12. Januar 1995, die zusammen einen Bereich von  $52^\circ\text{N}$  bis  $73^\circ\text{N}$  überdeckten (Abbildung 3 und 4): Der Säulengehalt von  $\text{HNO}_3$  nimmt bei zunehmender Mächtigkeit der vom OLEX beobachteten PSC-Schicht und bei abnehmenden Temperaturen deutlich ab.

Aus den OLEX-Messungen des Depolarisationsgrades der beobachteten PSCs folgt, daß es sich hauptsächlich um den Typ Ib handelte, also um runde Teilchen, die gewöhnlich als ternäre Lösungen von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  interpretiert werden. Um aus den gemessenen  $\text{HNO}_3$  Säulengehalten etwas über die Zusammensetzung der PSCs zu erfahren, wurden die Messungen mit Gleichgewichtsrechnungen über NAT und über ternärer Lösungen verglichen.

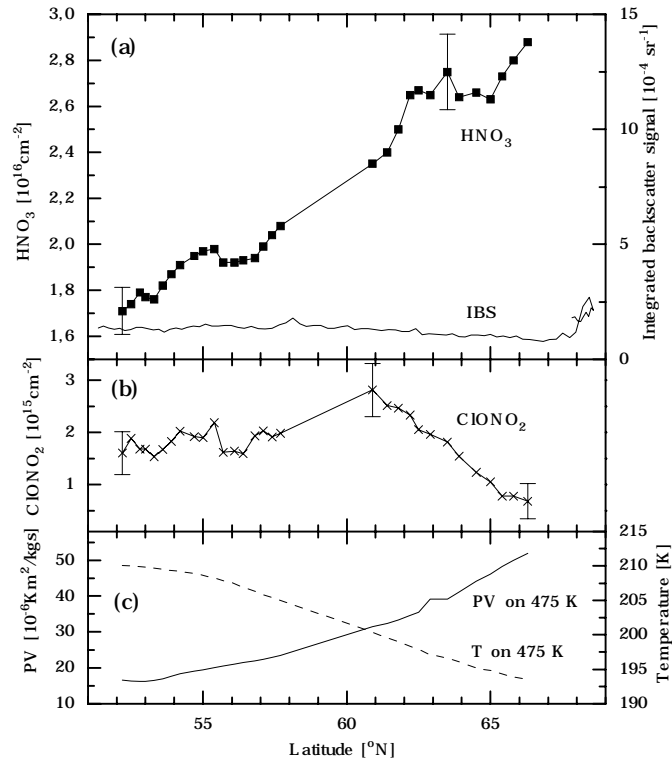


Abbildung 3. Die gleiche Darstellung wie in Abbildung 2 für den 11.1.1995.

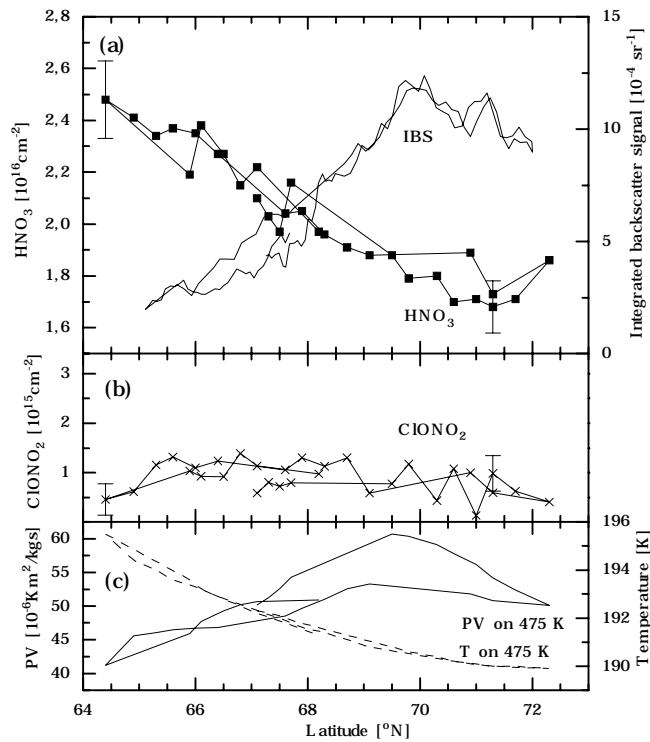
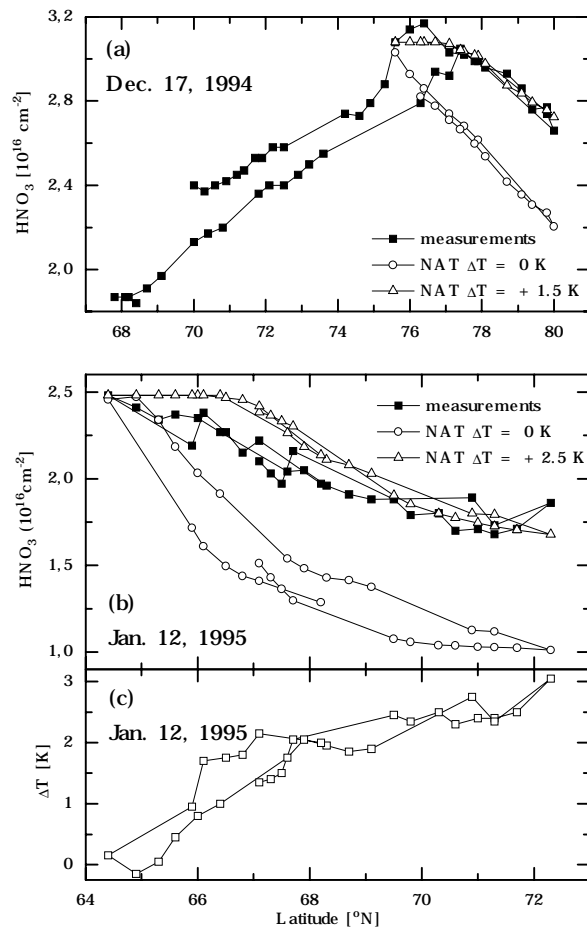


Abbildung 4. Die gleiche Darstellung wie in Abbildung 2 für den 12.1.1995.

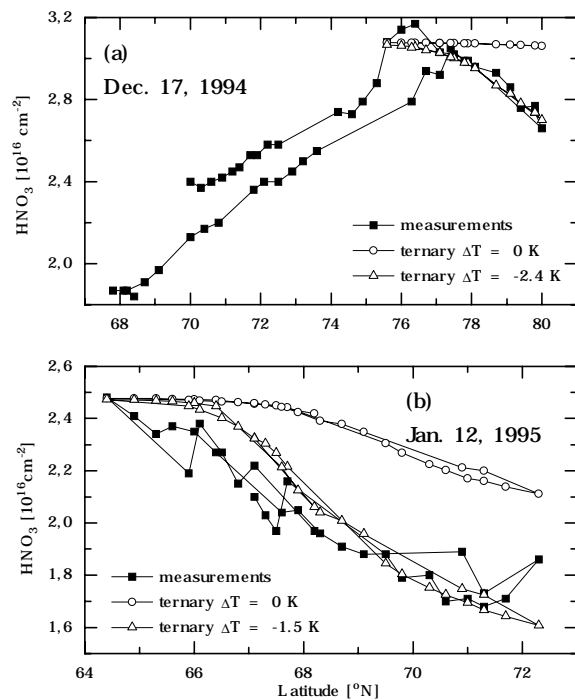


**Abbildung 5.** Gleichgewichtsrechnungen für  $\text{HNO}_3$  über NAT für unterschiedliche Temperaturoffsets gegenüber den ECMWF Temperaturprofilen. (a) 17.12.1994, (b) 12.1.1995, (c) Anpassung des Temperaturoffsets an die Messungen vom 12.1.1995.

Abbildungen 5 und 6 zeigen Simulationen bei unterschiedlichen Annahmen für einen Temperaturfehler in den ECMWF-Daten. Für ungestörte Werte ( $\Delta T = 0$ ) kann keines der beiden Modelle die Beobachtungen erklären. NAT (Abbildung 5) liefert eine zu starke Entfernung von  $\text{HNO}_3$  aus der Gasphase, was zu den Depolarisationsmessungen des Lidars paßt, die eher auf flüssige Aerosole deuten.

Die Rechnungen für ternäre Lösungen (Abbildung 6) liefern im Vergleich zu den Messungen eine zu geringe Aufnahme von  $\text{HNO}_3$ . Dies könnte verschiedene Gründe haben, die jedoch nicht durch unsere Messungen unterschieden werden können:

- (a) einen starken positiven Offset der Temperatur in den ECMWF-Daten, auf den eine Veröffentlichung von Knudsen (1996) hindeutet,
- (b) das Gleichgewichtsmodell könnte für die Situation nicht adäquat sein, oder
- (c) das Vorhandensein einer Mischung aus ternären Aerosolen und NAT-Teilchen, die sich z.B. in den OLEX Messungen auch andeutet (kleinere Bereiche bzw. Schichten von Typ Ia Partikeln) [8].



**Abbildung 6.** Gleichgewichtsrechnungen für  $\text{HNO}_3$  über ternärer  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  Lösung für unterschiedliche Temperaturoffsets gegenüber den ECMWF Temperaturprofilen. (a) 17.12.1994, (b) 12.1.1995.

### 2.3. Variabilität von $\text{ClONO}_2$ im Winter 1994/1995

Auf den insgesamt 22 Transallflügen im Winter 1994/95 wurde von MIPAS ein sehr umfangreicher  $\text{ClONO}_2$  Datensatz gewonnen, der sämtliche Phasen der Chloraktivierung und Deaktivierung im Polarwirbel umfaßt [5, 11, 13]. Die Ergebnisse sind in Abbildung 7 als Funktion der potentiellen Wirbelstärke dargestellt.

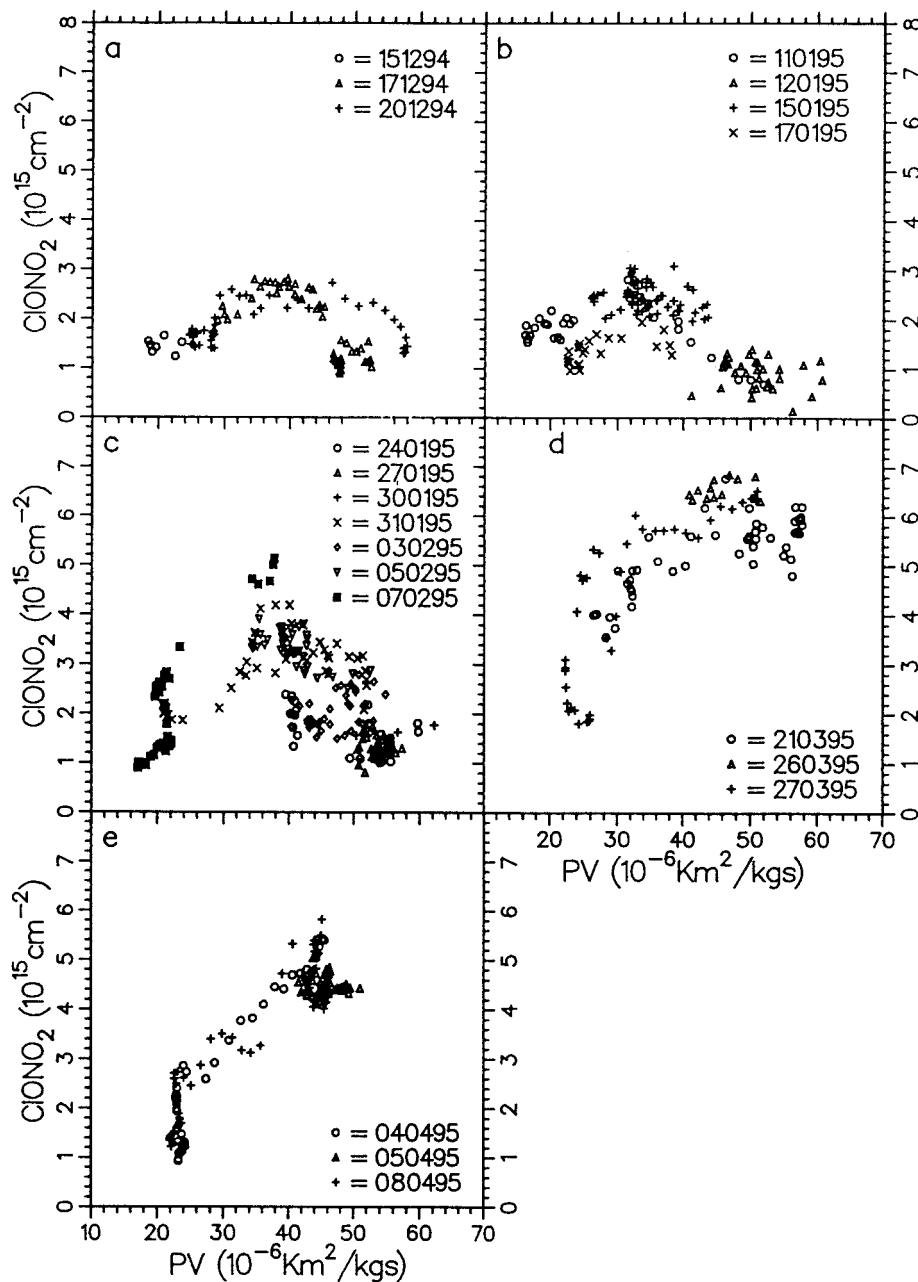
Zwischen Mitte Dezember und Ende Januar beobachtete MIPAS einen stabilen  $\text{ClONO}_2$ -Kragen mit gegenüber mittleren Breiten leicht erhöhten Werten von bis zu  $3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  am Wirbelrand und durchgehend sehr geringen  $\text{ClONO}_2$ -Säulen um  $1 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  im Polarwirbel (Abbildung 7a,b, siehe auch 2b, 3b, 4b). Das im Vergleich zum Wirbelrand fast vollständige Verschwinden von  $\text{ClONO}_2$  im Wirbel ließ auf weiträumige Umwandlung in reaktives Chlor ( $\text{Cl}_2$ ,  $\text{ClO}$ ) durch heterogene Reaktion mit  $\text{HCl}$  auf PSC-Teilchen schließen. In Übereinstimmung mit den Flugzeugmessungen wurden von bodengebundenen FTIR-Geräten in Aberdeen, Harestua und Kiruna im gleichen Zeitraum im Polarwirbel geringe  $\text{HCl}$ - und  $\text{ClONO}_2$ -Säulen gemessen, während am Wirbelrand Umwandlung von  $\text{HCl}$  in  $\text{ClONO}_2$  beobachtet wurde [5].

In der ersten Februarwoche beobachtete MIPAS am Wirbelrand einen deutlichen und im Wirbel einen leichten Anstieg der  $\text{ClONO}_2$ -Säulen (Abbildung 7c), was auf von Süden her einsetzende Deaktivierung schließen ließ. Ab dem 21. März wurden von MIPAS innerhalb des Polarwirbels ausschließlich sehr hohe  $\text{ClONO}_2$ -Säulen von bis zu  $7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  gemessen (Abbildung 7d). Dies bedeutete praktisch vollständiges Verschwinden von aktivem Chlor nur eine Woche nach der letzten kalten Periode, und Dominanz des Reservoirgases  $\text{ClONO}_2$ . In der Tat wurde in dieser Zeit auch von

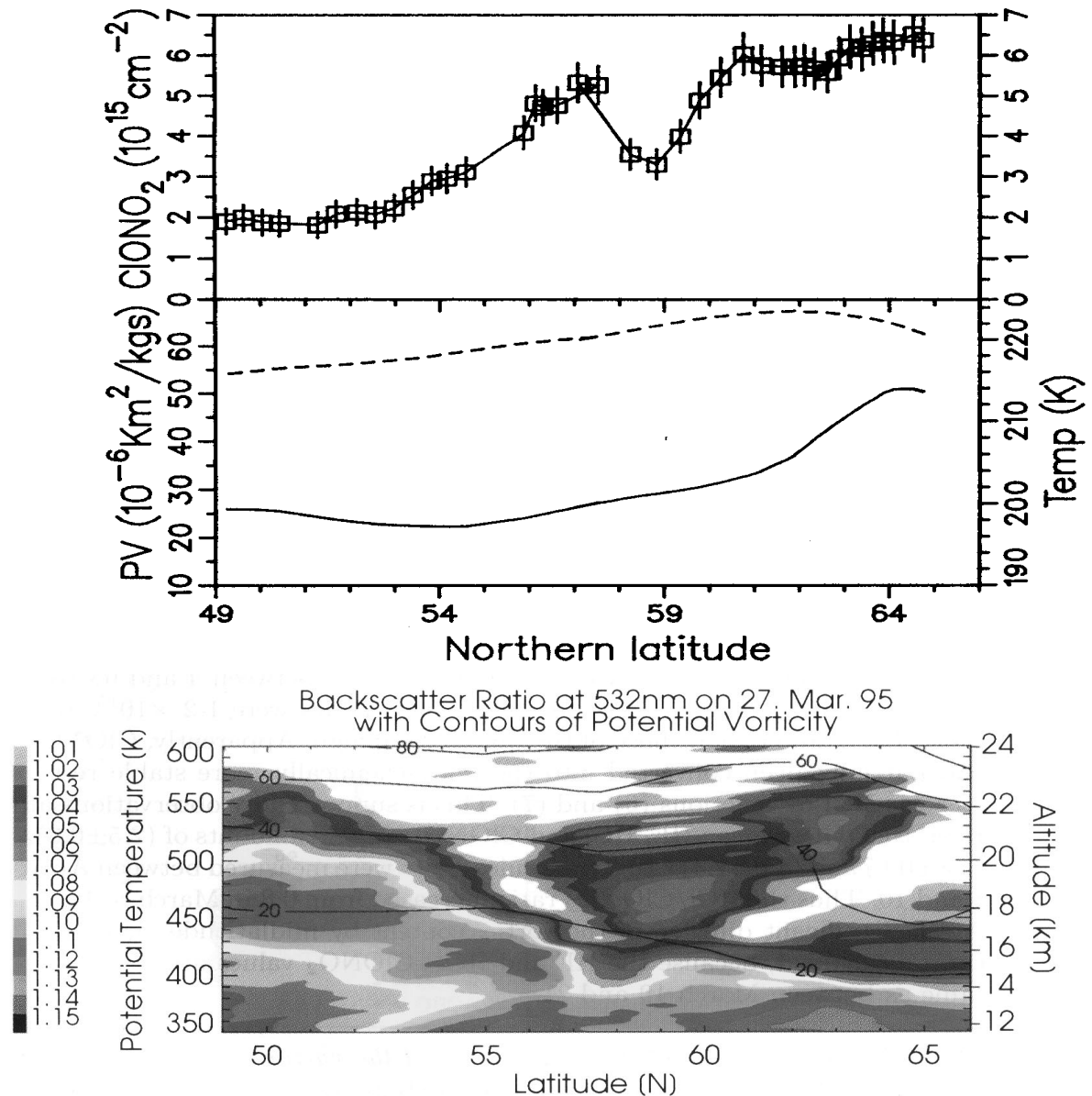


den drei Bodenstationen ein Überschuß von  $\text{ClONO}_2$  über  $\text{HCl}$ , das in ungestörten Zeiten dominierende Reservoirgas, festgestellt. Weiterhin können die hohen  $\text{ClONO}_2$ -Werte im März nur bei ausreichender Renoxifizierung des Polarwirbels zustande gekommen sein, was durch  $\text{NO}_2$ -Messungen von MIPAS bestätigt werden konnte (siehe Abschnitt 2.4).

Die etwas niedrigeren  $\text{ClONO}_2$ -Werte von  $4$  bis  $6 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  im Polarwirbel von Anfang April (Abbildung 7e) zeigen die beginnende Rückbildung des photochemisch stabileren Reservoirgas  $\text{HCl}$ . Übereinstimmend stieg Anfang April auch das über Harrestua gemessene  $\text{HCl}/\text{ClONO}_2$ -Verhältnis von  $0.8$  im März auf  $1.5$  an.



**Abbildung 7.** Von MIPAS im Winter 1994/1995 während 5 Kampagnen gemessene  $\text{ClONO}_2$ -Säulengehalte, aufgetragen gegen die potentielle Wirbelstärke (475 K Niveau). (a) Dezember, (b) Mitte Januar, (c) Ende Januar und Anfang Februar, (d) Ende März und (e) Anfang April.



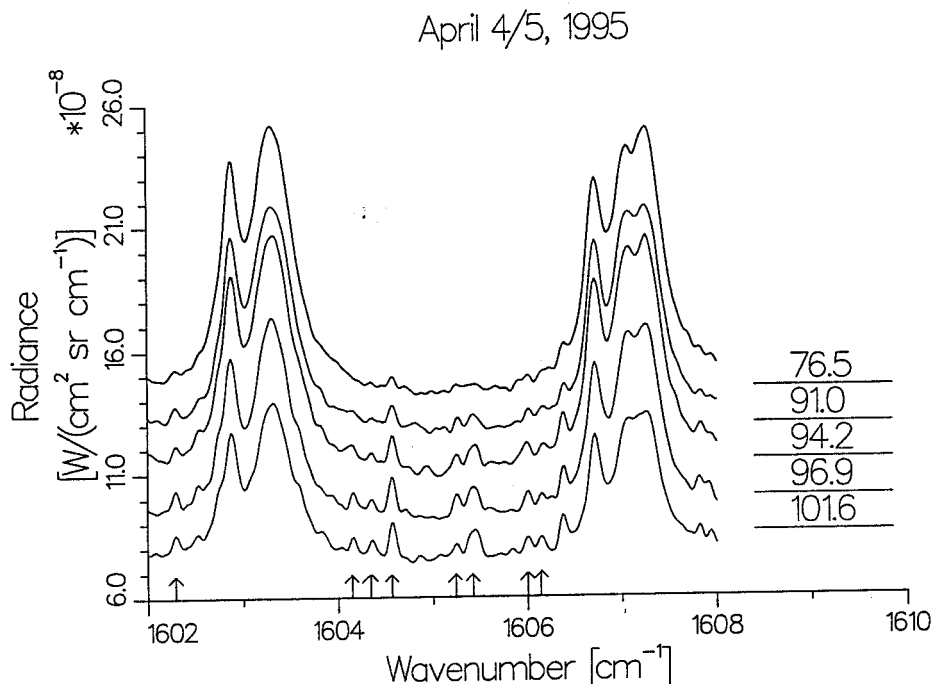
**Abbildung 8.** (oben) Von MIPAS während eines Transferflugs von Kiruna nach Manching gemessene  $\text{ClONO}_2$ -Säulengehalte, (Mitte) potentielle Wirbelstärke (—) und Temperatur (---) auf der 475 K Isentropen, sowie (unten) das von OLEX gemessene Rückstreuverhältnis.

Aufgrund der gegenüber früheren Jahren erheblich erhöhten räumlichen Auflösung der Messungen (Mittelung über 5-6 Minuten,  $\sim 40$  km Flugstrecke) konnte im Februar, März und April 1995 am Wirbelrand Mischung von  $\text{ClONO}_2$ -reicher Polarluft mit Luftmassen aus mittleren Breiten beobachtet werden. Ein sehr markantes Ereignis fand auf dem Flug am 27. März statt, der aus dem Polarwirbel in mittlere Breiten führte (Abbildung 8). Im Polarwirbel wurden sehr hohe  $\text{ClONO}_2$ -Säulen von  $6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  gemessen. Am Wirbelrand wurde zunächst bei  $59^\circ\text{N}$  ein  $\text{ClONO}_2$ -Minimum ( $3.3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ), aber weiter südlich bei  $57^\circ\text{N}$  ein weiteres  $\text{ClONO}_2$ -Maximum von  $5.3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  beobachtet, was auf Mischung von Luftmassen hindeutet. Diese Annahme wird überzeugend vom OLEX auf der Transall bestätigt, welches genau im Bereich des  $\text{ClONO}_2$ -Minimums ein Filament von ( $\text{ClONO}_2$ -ärmeren) Luftmassen aus

mittleren Breiten und im Bereich des Maximums Erosion von polarer Luft feststellte [5].

#### 2.4. Zeitliche und räumliche Variabilität von NO<sub>2</sub> im Winter 1994/1995

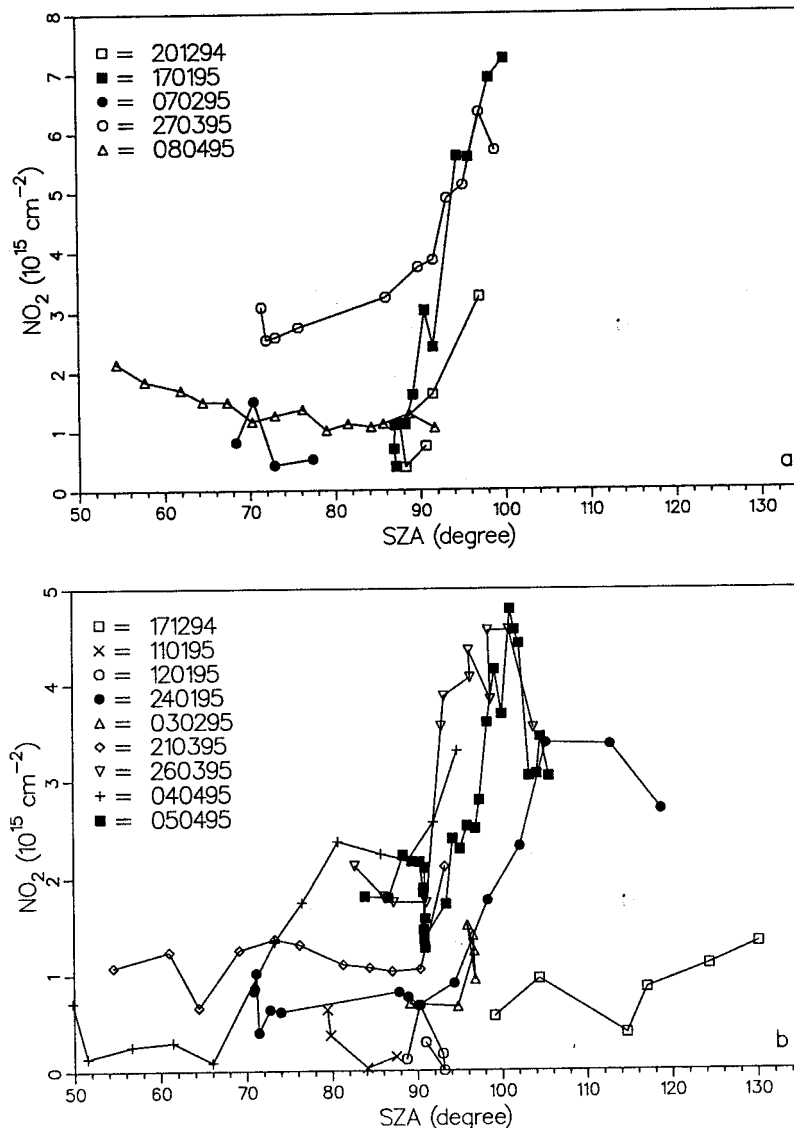
Im Winter 1994/95 konnte mit dem MIPAS-Experiment von der Transall aus erstmals NO<sub>2</sub> gemessen werden [6, 13]. Dies gelang bei 6.2 μm im P-Zweig der ν<sub>3</sub>-Bande durch verbesserte Vibrationsisolierung des Instruments [21] und die Optimierung des kurzwelligen Detektorkanals. Abbildung 9 zeigt, wie sich in den Meßspektren vom 4./5. April 1995 nach Sonnenuntergang bei 1605 cm<sup>-1</sup> schnell deutliche NO<sub>2</sub>-Linien bilden.



**Abbildung 9.** Von MIPAS-FT am 4. und 5. April 1995 in der Arktis bei verschiedenen Sonnenzenitwinkeln (Legende) beobachtete Spektren. Die NO<sub>2</sub>-Signaturen sind durch Pfeile angedeutet.

In Abbildung 10 sind sämtliche Messungen des Winters gegen den Sonnenzenitwinkel (SZA) aufgetragen, da NO<sub>2</sub> einen ausgeprägten Tagesgang besitzt. In mittleren Breiten beobachtete MIPAS im Verlauf des gesamten Winters langsam zunehmende Tageswerte und unmittelbar nach Sonnenuntergang (SZA = 90°), bedingt durch Umwandlung von NO in NO<sub>2</sub>, einen starken NO<sub>2</sub>-Anstieg um den Faktor 2-3 bis auf 7\*10<sup>15</sup> cm<sup>-2</sup>. Die hohen Nachtwerte zeigen, daß die Stratosphäre in mittleren Breiten durchgehend reichlich NO<sub>x</sub> enthielt.

Im Gegensatz dazu waren die zwischen Mitte Dezember und Mitte Januar im Polarwirbel gemessenen NO<sub>2</sub>-Werte von 1\*10<sup>15</sup> cm<sup>-2</sup> und darunter deutlich niedriger und wiesen kaum einen Tagesgang auf, was auf starke Denoxifizierung schließen ließ.



**Abbildung 10.** Von MIPAS im Winter 1994/1995 gemessene  $\text{NO}_2$ -Säulengehalte aufgetragen gegen den Sonnenzenitwinkel (SZA). (a) Flüge, die in mittleren Breiten, und (b) Flüge, die innerhalb des Polarwirbels endeten.

Von Ende Januar bis Anfang April wurden die Beobachtungen im Polarwirbel, verursacht durch  $\text{HNO}_3$ -Photolyse, den Verhältnissen in mittleren Breiten zunehmend ähnlicher. Die Renoxifizierung zeigte sich insbesondere im Anstieg der  $\text{NO}_2$ -Säulen nach Sonnenuntergang bis auf  $3.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  am 24. Januar und auf  $5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  im März und April. Dadurch wurde die gleichzeitig beobachtete schnelle Chlor-Deaktivierung durch  $\text{ClONO}_2$ -Bildung ermöglicht (siehe Abschnitt 2.3).

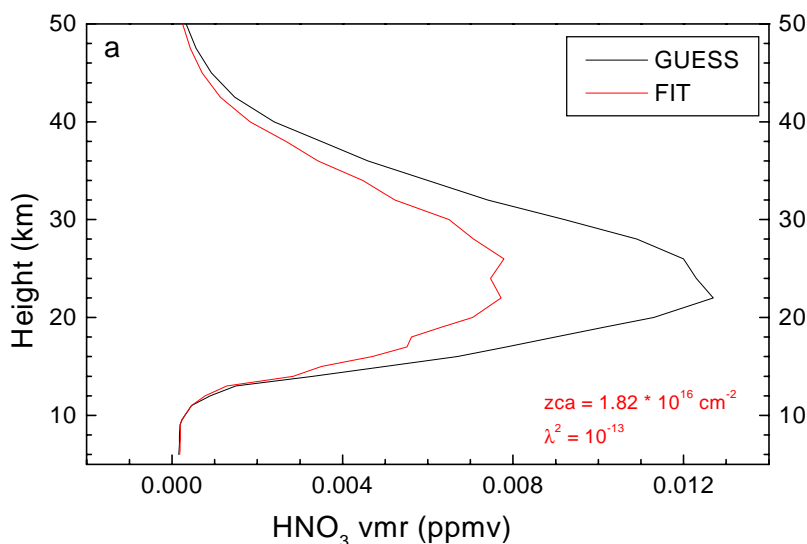
Am Anfang des Winters stimmten die von MIPAS und dem ebenfalls auf der Transall betriebenen DOAS-Experiment gemessenen  $\text{NO}_2$ -Säulen gut überein, jedoch traten im März und April größere Abweichungen auf. Ein möglicher Grund ist Beobachtung unterschiedlicher Luftmassen wegen verschiedener Meßgeometrien. Die von MIPAS und DOAS beobachtete Denoxifizierung des Polarwirbels wurde durch Modellrechnungen des Cambridge 3D Chemie-Transport-Modells SLIMCAT bestätigt. Die von

MIPAS nach Sonnenuntergang gemessenen starken  $\text{NO}_2$ -Gradienten wurden zumindest qualitativ reproduziert [6, 13].

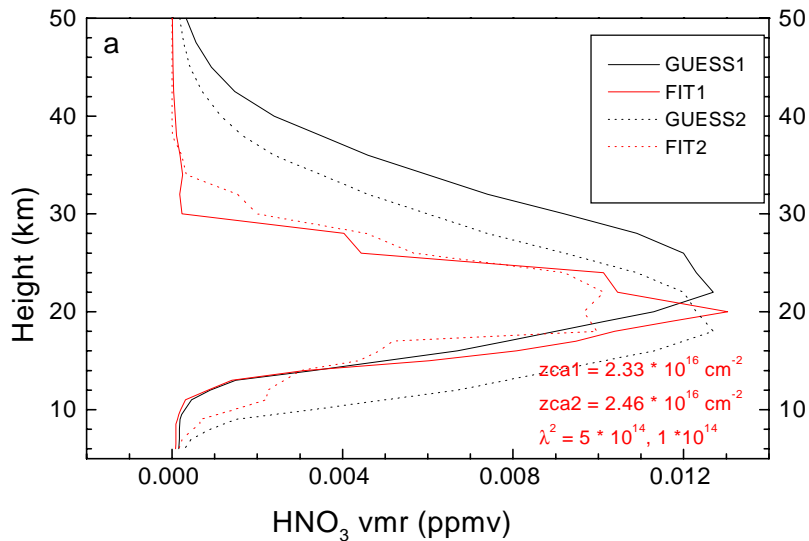
## 2.5. Ableitung von Information über das Vertikalprofil von $\text{HNO}_3$

Da MIPAS bei Aufwärtssondierung von der Transall aus immer ein integrales Signal aus der gesamten Atmosphäre oberhalb des Flugniveaus erfaßt, werden aus den Meßspektren in der Regel vertikale Säulengehalte berechnet. Dies erfolgt durch Skalieren von "first-guess-Profilen", deren Form möglichst genau bekannt sein sollte. Auf einigen Flügen in den Wintern 1993/94 und 1994/95 wurde jedoch auch versucht, aus der schwachen Abhängigkeit der Beitragsfunktionen vom Elevationswinkel Höheninformation über stratosphärische Spurengase zu gewinnen, z.B. die Höhe des Maximums.

In einer Diplomarbeit [20] wurde nachgewiesen, daß unter verschiedenen Elevationswinkeln aufgenommene Spektren ausreichende Höheninformation enthalten. Als optimales Meßszenario erwies sich ein Winkelscan über  $2^\circ$ ,  $4^\circ$  und  $7^\circ$ . Das erfolgversprechendste Spurengas für einen "Profilfit" war  $\text{HNO}_3$  wegen seiner starken spektralen Signatur und seines annähernd schichtweisen Vorkommens in der unteren Stratosphäre. In der Auswertung wurde ein bestimmtes "first-guess"-Profil für jeden Elevationswinkel unabhängig skaliert, was bei unzutreffender Lage des Maximums des "first-guess" zu unterschiedlichen Säulendichten führt. Das Profil wurde dann vertikal in eine physikalisch sinnvollere Lage verschoben, bei der die Säulendichten nicht mehr winkelabhängig waren. In einer daran anknüpfenden Arbeit [14] wurde ein automatisiertes Inversionsverfahren angewendet. Dazu wurde das Profil in 16 Segmente von 2-3 km vertikaler Ausdehnung aufgeteilt, die voneinander unabhängig skaliert werden konnten. Die Auswertung erfolgte nach der Methode der kleinsten Quadrate mit Tikhonov-Regularisierung.



**Abbildung 11.** Aus MIPAS Messungen vom 15. Februar 1994 außerhalb des Polarwirbels abgeleitetes  $\text{HNO}_3$ -Vertikalprofil ( $z_{ca}$ : Säulengehalt,  $\lambda^2$ : Regularisierungsparameter).



**Abbildung 12.** Aus MIPAS Messungen vom 21. März 1995 innerhalb des Polarwirbels abgeleitetes  $\text{HNO}_3$ -Vertikalprofil ( $zca$ : Säulengehalt,  $\lambda^2$ : Regularisierungsparameter).

Abb. 11 und 12 zeigen  $\text{HNO}_3$ -Profile, die aus MIPAS-Winkelscans vom 15. Februar 1994 und vom 21. März 1995 abgeleitet wurden. Die erste Messung fand außerhalb, die zweite dagegen innerhalb des Polarwirbels statt. In beiden Fällen wurde als "first-guess" ein Profil aus mittleren Breiten verwendet. Während dieses bei der Auswertung der Messung vom 15. Februar 1994 lediglich insgesamt herunterskaliert wurde, wurde es beim Fit der Messung vom 21. März 1995 um 4 km nach unten verschoben und vertikal gestaucht (GUESS1, FIT1). Dieses Ergebnis spiegelt das Absinken der Luftmassen innerhalb des Polarwirbels wider [14].

In Abbildung 12 ist zusätzlich das Ergebnis bei einem um 4 km nach unten verschobenen als "first-guess" Profil dargestellt (GUESS2, FIT2). Die Lage des Maximums bleibt unverändert, der vertikale Säulengehalt ist 6% höher.

### 3. Voraussichtlicher Nutzen, Verwertbarkeit des Ergebnisses, Publikationen usw.

Die Ergebnisse der arktischen Meßkampagnen stehen national und international den Wissenschaftlern zur Verfügung. Die ausgewerteten Gesamtsäulengehalte wurden in die NILU (Norwegian Institute for Air Research) Datenbank eingespeist. Die Meßdaten können zur Optimierung chemischer und dynamischer Modellrechnungen der Stratosphäre verwendet werden. Finanzielle Verwertungsmöglichkeiten bestehen nicht.

Eine Liste mit sämtlichen im Rahmen der BMBF-Vorhaben 01VOZ30A8, 01LO9218/2 und 01LO9531/0 veröffentlichten IMK-Arbeiten ist in Abschnitt 4 aufgeführt. Die Veröffentlichungen [5, 6, 8, 13, 14 und 17] in der Liste wurden durch die Förderung des Vorhabens 01 LO9531/0 ermöglicht.

## 4. Veröffentlichungen

### 4.1. Veröffentlichungen in Zeitschriften

1. Blom, C.E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, and M. Höpfner, Airborne measurements during the European arctic stratospheric ozone experiment: column amounts of HNO<sub>3</sub> and O<sub>3</sub> derived from FTIR emission sounding, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1351-54, 1994.
2. Blom, C.E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, M. Höpfner, and C. Piesch, Spatial and temporal variability of ClONO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, and O<sub>3</sub> in the Arctic winter of 1992/93 as obtained by airborne infrared emission spectroscopy, *J. Geophys. Res.*, 100, 9101-9114, 1995.
3. Blom, C.E., M. Höpfner and Ch. Weddigen, Correction of phase anomalies of atmospheric emission spectra by the double-differencing method, *Appl. Opt.*, 35, 2649-2652, 1996.
4. Chipperfield, M.P., J.A. Pyle, C.E. Blom, N. Glatthor, M. Höpfner, T. Gulde, C. Piesch, and P. Simon, The variability of ClONO<sub>2</sub> and HNO<sub>3</sub> in the Arctic polar vortex: Comparison of Transall Michelson interferometer for atmospheric sounding measurements and three-dimensional model results, *J. Geophys. Res.*, 100, 9115-9129, 1995.
5. Glatthor, N., C.E. Blom, T. Blumenstock, H. Fischer, T. Gulde, M. Höpfner, W. Kimmig, C. Piesch, W. Bell, B. Galle, and M. Wirth, MIPAS-Transall observations of the variability of ClONO<sub>2</sub> during the Arctic winter of 1994/95, *J. Atmos. Chem*, 30, 81-101, 1998.
6. Glatthor, N., C.E. Blom, T. v. Clarmann, H. Fischer, T. Gulde, C. Piesch, F. Erle, K. Pfeilsticker, M.P. Chipperfield, A.M. Lee, and J.A. Pyle, Airborne remote sensing of NO<sub>2</sub> in the Arctic winter of 1994-1995 and comparison with a three-dimensional chemical transport model, *J. Geophys. Res.*, 103, 13.315-13.326, 1998.
7. Höpfner, M., C.E. Blom, T. Blumenstock, H. Fischer, N. Glatthor, and T. Gulde, Evidence for the removal of gaseous HNO<sub>3</sub> inside the Arctic polar vortex in January 1992, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 149-152, 1996.
8. Höpfner, M., C.E. Blom, H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, C. Piesch, W. Renger, and M. Wirth, HNO<sub>3</sub> and PSC measurements from the TRANSALL: Sequestering of HNO<sub>3</sub> in the winter of 1994/95, *J. Atmos. Chem*, 30, 61-79, 1998.
9. Pfeilsticker, K., C.E. Blom, R. Brandtjen, H. Fischer, N. Glatthor, A. Grendel, T. Gulde, M. Höpfner, D. Perner, Ch. Piesch, U. Platt, W. Renger, J. Sessler, and M. Wirth, Aircraft-borne Detection of the Stratospheric Column Amounts of O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, OCIO, ClONO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, and Aerosols around the Arctic Vortex (79°N to 39°N) during Spring 1993, 1. Observational data, *J. Geophys. Res.*, 102, 10.801-10.814, 1997.
10. Weddigen, Ch., C.E. Blom, and M. Höpfner, Phase corrections for the emission sounder MIPAS-FT, *Appl. Opt.*, 32, 4586-4589, 1993.

### 4.2. Veröffentlichte Tagungsbeiträge

11. Blom, C.E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, M. Höpfner, W. Kimmig, C. Piesch, and A.M. Lee, MIPAS-Transall observations on the variability of ClONO<sub>2</sub> during

- the Arctic winter of 1994/95, *Proc. 3th Europ. Symp. on Polar Stratospheric Ozone*, Schliersee 1995, Air Pollution Research Report, 56, European Commission, 314-318, 1996.
12. Glatthor, N., C.E. Blom, H. Fischer, T. Gulde, and C. Piesch, Interpretation of  $\text{HNO}_3$  and  $\text{O}_3$  burdens, observed in winter 1993/94 on flights across the Arctic vortex edge, *Proc. 3th Europ. Symp. on Polar Stratospheric Ozone*, Schliersee 1995, Air Pollution Research Report, 56, European Commission, 219-223, 1996.
  13. Glatthor, N., C.E. Blom, H. Fischer, M.P. Chipperfield, A.M. Lee, and J.A. Pyle, Comparison of MIPAS-FT Observations of  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{ClONO}_2$  and  $\text{NO}_2$  in Winter 1994/95 with SLIMCAT Model Calculations, *Proc. 4th Europ. Symp. on Polar Stratospheric Ozone*, Schliersee 1997, Air Pollution Research Report, 66, European Commission, 269-272, 1998.
  14. Glatthor, N., C.E. Blom, D. Buggle, T. v. Clarmann, H. Fischer, and M. Höpfner, Information on the vertical distribution of trace gases from upward scans with MIPAS-FT, *Proc. of the 8th International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry (ASSFTS8)*, Meteo-France, Toulouse, 16-18 November 1998, 257, 1999.
  15. Gulde, T., C. Piesch, C.E. Blom, H. Fischer, F. Fergg, and G. Wildgruber, The airborne MIPAS infrared emission experiment, *Proc. of the 1<sup>st</sup> International Airborne Remote Sensing Conference and Exhibition*, Hrsg. Environm. Res. Inst. of Michigan, Ann Arbor, Vol. II, 301-311, 1994.
  16. Höpfner, M., C.E. Blom, H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, W. Kimmig, C. Piesch, and A.M. Lee, MIPAS-Transall observations on the condensation of  $\text{HNO}_3$  during the Arctic winter of 1994/95, *Proc. 3th Europ. Symp. on Polar Stratospheric Ozone*, Schliersee 1995, Air Pollution Research Report, 56, European Commission, 213-218, 1996.
  17. Pfeilsticker, K., F. Erle, U. Platt, C.E. Blom, and W. Renger, Aircraft-borne measurements of the  $\text{NO}_2$ ,  $\text{HNO}_3$ , and  $\text{ClONO}_2$  partitioning during the Arctic winters 1991-1995, *Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium*, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 567-570, 1998.

### 4.3. Doktorarbeiten

18. Höpfner, M., Das flugzeuggetragene Fernerkundungsexperiment MIPAS-FT: Auswertung und Interpretation der arktischen Meßkampagnen 1991/92 und 1992/93, Doktorarbeit, Universität Karlsruhe, Oktober 1994.

### 4.4. Diplomarbeiten

19. Schlipper, R., Analyse der thermischen Eigenemission der optischen Komponenten des MIPAS-Flugzeugexperiments, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, Mai 1994.
20. Buggle, D., Ableitung von Information über das Vertikalprofil von Spurenstoffen aus MIPAS-FT-Spektren, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, Januar 1995.
21. Kimmig, W., Auswirkung von Vibrationen auf die Funktionsfähigkeit des MIPAS-FT. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, Dezember 1995.



**Abschlußbericht des Instituts für Umweltphysik**  
**der Universität Heidelberg**

im Vorhaben

Erweiterte Interpretation der mit den Transallfernerkundungsgeräten (LIDAR, MIPAS, DOAS) gewonnenen Datensätzen.

gefördert durch das Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF)

Förderkennzeichen 01LO9531/0

Laufzeit 01/96-12/98

Projektleiter: Priv. Doz. Dr. K. Pfeilsticker

---

Institut für Umweltphysik  
Universität Heidelberg  
INF 229  
D-69120 Heidelberg

---

# **1.) Einleitung**

Das Vorhaben war ein Teil der weltweiten Bemühungen, die dynamischen und photochemischen Prozesse besser zu verstehen, die zu einem Abbau der stratosphärischen Ozonschicht in den letzten Jahren geführt haben. Im Einklang mit den Leitlinien des deutschen Ozonforschungsprogrammes und den Zielen des vierten bzw. fünften Rahmenprogrammes der EU 'Klima und Umwelt', trug das Vorhaben dazu bei, einige bisher noch nicht ausreichend bekannte Prozesse der Stratosphäre zu studieren.

Die in früheren Jahren in der Arktis durchgeführten Meßkampagnen ('Airborne Arctic Stratospheric Experiment' (AASE), 'European Arctic Ozone Experiment' (EASOE) und 'Second European Stratospheric Arctic and Mid-Latitude Experiment' (SESAME)) haben einige besorgniserregende Parallelen in der Entwicklung zu dem in der antarktischen Stratosphäre führenden Ozonloch gezeigt. Starke stratosphärische Ozonverluste werden inzwischen auch aus der arktischen Ozonschicht im Frühjahr berichtet, die z.B. im Winter 1994/95 teilweise bis zu 50 % betragen. Trotz der in dem Montrealer und den Folgeabkommen beschlossenen Reduktionen der FCKW's Emissionen wird die stratosphärische Chlorbelastung bis zur Jahrtausendwende weiter ansteigen. Weiterhin werden diabatischen Abkühlungsprozesse in der Stratosphäre wegen des Anstieges der atmosphärischen CO<sub>2</sub> Konzentration (und anderer Treibhausgase) verstärkt, wodurch die Gefahr dramatischer Ozonverluste in der arktischen Stratosphäre bis weit ins nächste Jahrhundert nicht auszuschließen sind.

In Anbetracht dieser Bedrohung erschien es ratsam, die chemischen Vorgänge in der polaren Stratosphäre insbesondere innerhalb und den direkt an den arktischen Polarwirbel angrenzenden Gebieten – insbesondere zu den Zeiten, während denen Chloraktivierungs- und Ozonabbauprozesse verstärkt stattfinden, also im Spätwinter und Frühling – weiter zu untersuchen.

Um diese Fragestellungen eingehender zu untersuchen, sollten in diesem Forschungsvorhaben die während der Transallflüge in den Jahren 1991 bis 1996 gewonnenen Datensätze noch weiter untersucht werden. Ein besonderes Augenmerk galt hierbei dem Verhalten den reaktiven Halogenverbindungen (ClO, BrO, OClO, etc.), sowie den oxidierten Stickstoffverbindungen (NO, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, ClONO<sub>2</sub>, und HNO<sub>3</sub>).

## **2.) Ziele des vom IUP/Heidelberg zu bearbeitenden Teil des Forschungsvorhabens**

Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens wurden Messungen stratosphärischer Spurenstoffe interpretiert, die mit der Differentiellen Optischen AbsorptionsSpektroskopie (DOAS) auf dem Forschungsflugzeug Transall C-160 in den Wintern 1991/92 bis 1994/95 durchgeführt wurden. Ein Hauptaugenmerk galt der räumlichen Verteilung der Spurenstoffe Ozon, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, BrO und OClO, um die stratosphärische Ozonchemie über der Nordhalbkugel im Winter näher zu untersuchen.

Die folgende Fragestellungen sollten u.a. von dem Projektnehmer IUP/Heidelberg mit Hilfe der durch das DOAS-vis Instrument und anderer an Bord der Transall gewonnener Datensätze eingehender untersucht werden:

- 1.) Als ein Unterprojekt der gemeinsamen Dateninterpretation der Arbeitsgruppen (IUP und FZ-K) sollte diese Arbeitsgruppe die gemeinsamen NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> Messungen aufarbeiten. Insbesondere zählte dazu die Interpretation der zahlreichen mit der Transall gemessenen geo-

graphischen Breitenschnitte von  $\text{NO}_2/\text{HNO}_3$  (und  $\text{ClNO}_3$  in Bezug auf den  $\text{NO}_2$ -Gehalt in  $\text{ClNO}_3$ ). Da die Messungen dieser Verbindungen üblicherweise von den mittleren Breiten bis in den Polarwirbel reichten, versprachen sie ein ausgezeichnetes Bild der bekannten Prozesse Umwandlung von  $\text{NO}_x$  in  $\text{NO}_y$  in der nördlichen Hemisphäre im Winter zu liefern. So konnte bei diesen Breitenschnitten einerseits das bekannte ‚Noxon Cliff‘ (Umwandlung von  $\text{NO}_x$  in vornehmlich  $\text{N}_2\text{O}_5$ ) durch die Abnahme von  $\text{NO}_2$  und andererseits im Polarwirbel die heterogene Umwandlung von  $\text{N}_2\text{O}_5$  anhand einer entsprechenden Zunahme von  $\text{HNO}_3$  zu sehen. Weiterhin sollten dynamische Einflüsse auf die Breitenabhängigkeit der  $\text{NO}_2$  – Säule näher untersucht werden.

- 2.) OClO-Messungen im arktischen Polarwirbel und in den umgebenden Randgebieten: Die im Polarwirbel (und wie sich in dem Forschungsvorhaben auch zeigte) außerhalb des Polarwirbels gemessenen OClO Säulendichten mit Hilfe der DOAS Himmelsstreulicht- und direktem Mondlichtspektroskopie sollten eingehender in Bezug auf die Prozesse der Chloraktivierung und die Chemie des OClO/BrO Systems untersucht werden.
- 3.)  $\text{NO}_2/\text{NO}_3$  aus Mondmessungen: Die bei insgesamt 6 Transallflügen durchgeführten direkten Mondlichtmessungen von  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{O}_4$ , OClO und  $\text{H}_2\text{O}$  sollten im Hinblick auf die Chemie des  $\text{NO}_2/\text{NO}_3$  Systems eingehender untersucht werden. Dabei zeigten die nächtlichen  $\text{NO}_3$  Säulengehalte anders als zunächst vermutet höhere Konzentrationen in den polaren Gebieten als in den mittleren Breiten. Der Grund hierfür sollte eingehender untersucht werden.

### **3.) Durchgeführte Arbeiten**

Die in dem Forschungsvorhaben durchgeführten Arbeiten konzentrierten sich auf folgende drei Bereiche.

#### **a.) Auswertung der DOAS Streulichtspektren**

Die Auswertung der Meßspektren erfolgte mit einem in unserer Arbeitsgruppe entwickelten nichtlinearen Fitalgorithmus. Bei der Auswertung der Meßspektren wurde dabei üblicherweise eine Reihe von Referenzspektren (z.B. von  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}_3$ , BrO, OClO,  $\text{O}_4$ , usw.) simultan mit einem sogenannten Fraunhoferreferenzspektrum an das Meßspektrum angefügt. Die Verwendung eines Fraunhoferreferenzspektrums, das bei hochstehender Sonne gewonnen wurde, ist notwendig, um die im Vergleich zu den optischen Dichten der zu messenden Spurenstoffe viel dichteren solaren Fraunhoferabsorptionslinien aus dem Meßspektrum zu eliminieren. Die dabei mit entfernten Spurenstoffabsorptionen des Fraunhoferreferenzspektrums wurden durch unterschiedliche Verfahren bestimmt. Näheres zur Auswertung der Meßspektren findet man in den verschiedenen Publikationen von Pfeilsticker et al. [1999] und Erle et al. [1998].

#### **b.) Dateninterpretation**

Die in Abschnitt 4 (1. bis 3.) angeführten Punkte wurden im Rahmen des Vorhabens alle behandelt und zum größten Teil auch schon in wissenschaftlichen Publikationen veröffentlicht bzw. zur Veröffentlichung [Erle et al., 1999a, b] eingereicht [Pfeilsticker et al., 1997; Glatt-hor et al., 1998; Pfeilsticker et al., 1998; Erle et al., 1998; Pfeilsticker et al., 1999; Erle et al., 1999a, b, c, (b und c paper in prep)]. Diese Arbeiten wurden teilweise in Zusammenarbeit mit den Unterauftragnehmern (DLR, MPI-CH, FZ-K) durchgeführt.

### c.) Modellrechnungen

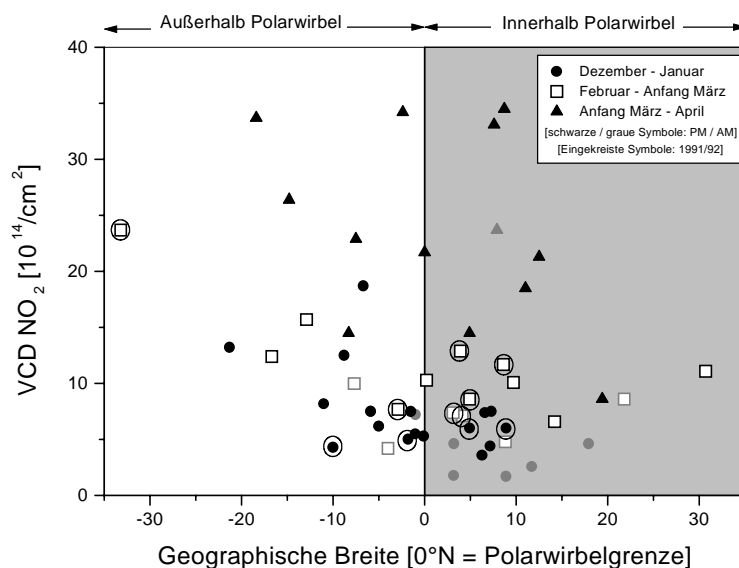
Zur Interpretation der Meßdaten wurde weiterhin ein eindimensionales Chemiemodell entwickelt, mit dessen Hilfe sich die chemische Entwicklung der beprobten Luftmassen über einen Zeitraum von 10 Tagen entlang von Luftmassentrajektorien untersuchen läßt. Die Entwicklung dieses Modells, dessen Ursprünge auf ein im Rahmen des OFP entwickelten Modells von Müller et al. [1994] zurückgeht, erschien notwendig, um einige Sensitivitätsuntersuchung durchzuführen, wie sie durch Variation der Modellparametern erreicht werden. Der Einsatz dieses Modells erlaubte u.a. die außerhalb der Polarwirbels gelegentlich beobachteten „OCIO- Wolken“ als Folge der effizienten heterogenen BrONO<sub>2</sub>-Hydrolyse an kalten stratosphärischen Schwefelsäureaerosolen zu identifizieren [Erle et al., 1998].

Weiterhin wurden die NO<sub>2</sub>-Säulendichten mit den gemeinsam gewonnenen NO<sub>2</sub>- Meßdaten des Forschungszentrums Karlsruhe [Glatthor et al., 1998] verglichen, sowie detaillierten Vergleichen mit einem 3-D Modell der Universität Cambridge unterzogen.

## 4.) Ergebnisse

Stichwortartig seien im folgenden einige der herausragenden Ergebnisse des Forschungsvorhabens erwähnt. Weitere Einzelheiten der Ergebnisse lassen sich in den in Kapitel 6 aufgeführten, und dem Forschungsbericht teilweise beigelegten wissenschaftlichen Berichte und Publikationen nachlesen.

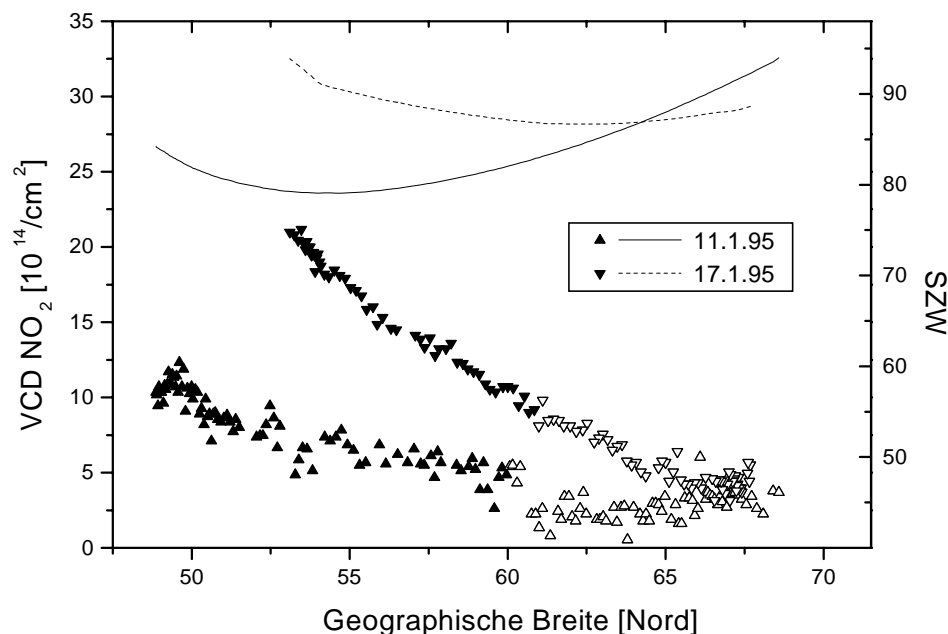
- 1.) Mit Hilfe der gemessenen NO<sub>2</sub>-Konzentrationen wurde unter Einbeziehung von dreidimensionalen chemischen Modellrechnungen die räumliche und zeitliche Entwicklung der Denoxifizierung im Winter und Renoxifizierung im Frühjahr untersucht. Dabei zeigte sich an der Polarwirbelgrenze ein deutlicher NO<sub>2</sub>-Gradient, der innerhalb des Wirbels die verstärkte Denoxifizierung durch heterogene Prozesse widerspiegelt, während das Verhalten außerhalb des Wirbels hauptsächlich durch die Gasphasenchemie von NO<sub>2</sub>, aber auch durch die atmosphärische Dynamik bestimmt wird (Abbildung 1) [Erle, 1999].



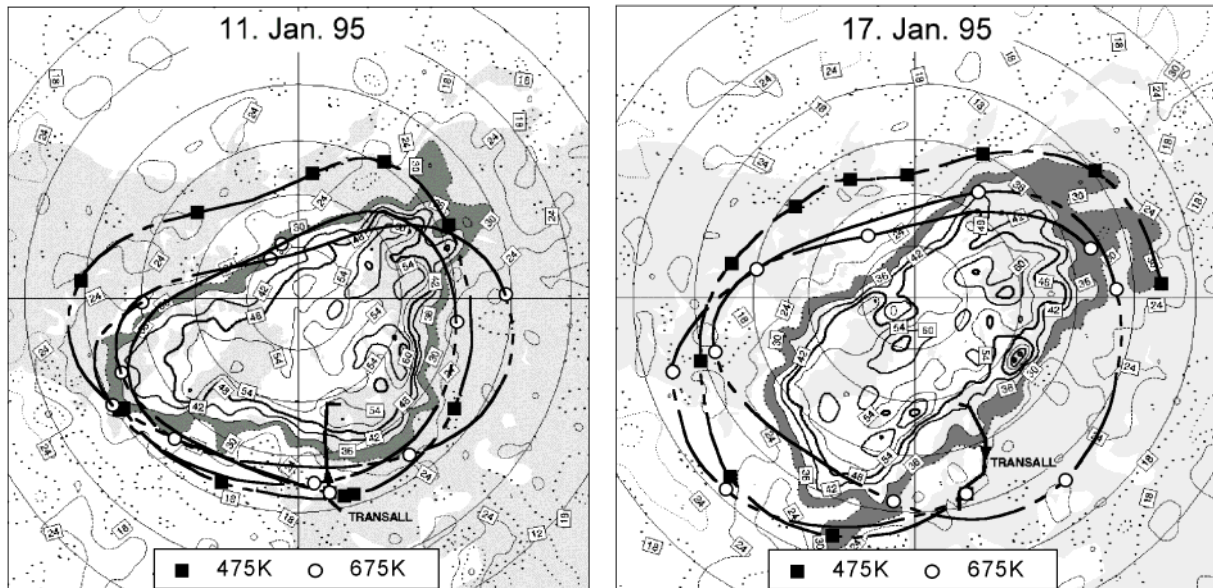
**Abbildung 1** Vertikale NO<sub>2</sub>-Säulendichten für den Sonnenzenitwinkel von 90° in den Wintern 1991/92 – 1994/95 als Funktion der Position des Polarwirbels. Schwarze und graue Symbole bezeichnen Sonnenuntergangs- bzw. Sonnenaufgangsmessungen.

Die Beeinflussung der  $\text{NO}_2$ - Säulendichte durch dynamische Prozesse, insbesondere in den mittleren Breiten zwischen Polarwirbel und Subtropen, soll durch folgendes Beispiel illustriert werden. Beim Flug von Manching nach Kiruna am 11. Januar 1995 bzw. in umgekehrter Richtung am 17. Januar bei  $54^\circ$  nördlicher Breite - jeweils deutlich außerhalb des Polarwirbels - wurden deutliche Unterschiede in der  $\text{NO}_2$ -Säule beobachtet, die allein aus chemischen Gründen nicht zu erklären sind (Abbildung 6.2).

Allerdings kann dieses Verhalten durch die unterschiedliche Herkunft der Luftpakete aus unterschiedlichen geographischen Breiten hinreichend erklärt werden: In Abbildung 3 sind für die beiden Tage (11.1.95 links; 17.1.95 rechts) die Lage des Polarwirbels, die Flugrouten der Transall und die 10-Tage-Luftmassentrajektorien (475 K und 675 K). Die am 11. Januar untersuchten Luftmassen wurden aus deutlich höheren Breiten transportiert als die am 17. Januar untersuchten Luftmassen (675 K-Isentrope: 24 Stunden vor dem 11. Januar:  $54.1^\circ\text{N}$ ; 24 Stunden vor dem 17. Januar:  $40.3^\circ\text{N}$ ). Dies hatte zur Folge, daß die am 11. Januar untersuchten Luftmassen auf der 675 K-Isentrope in den letzten 10 Tagen vor der Messung durchschnittlich eine Stunde weniger Sonnenlicht pro Tag ausgesetzt waren als die am 17. Januar untersuchten Luftmassen (innerhalb der letzten 3 Tage sogar dreimal weniger Sonnenlicht). Ebenso lagen die Temperaturen in den letzten 10 Tagen durchschnittlich um etwa 6 K tiefer (675 K-Isentrope).

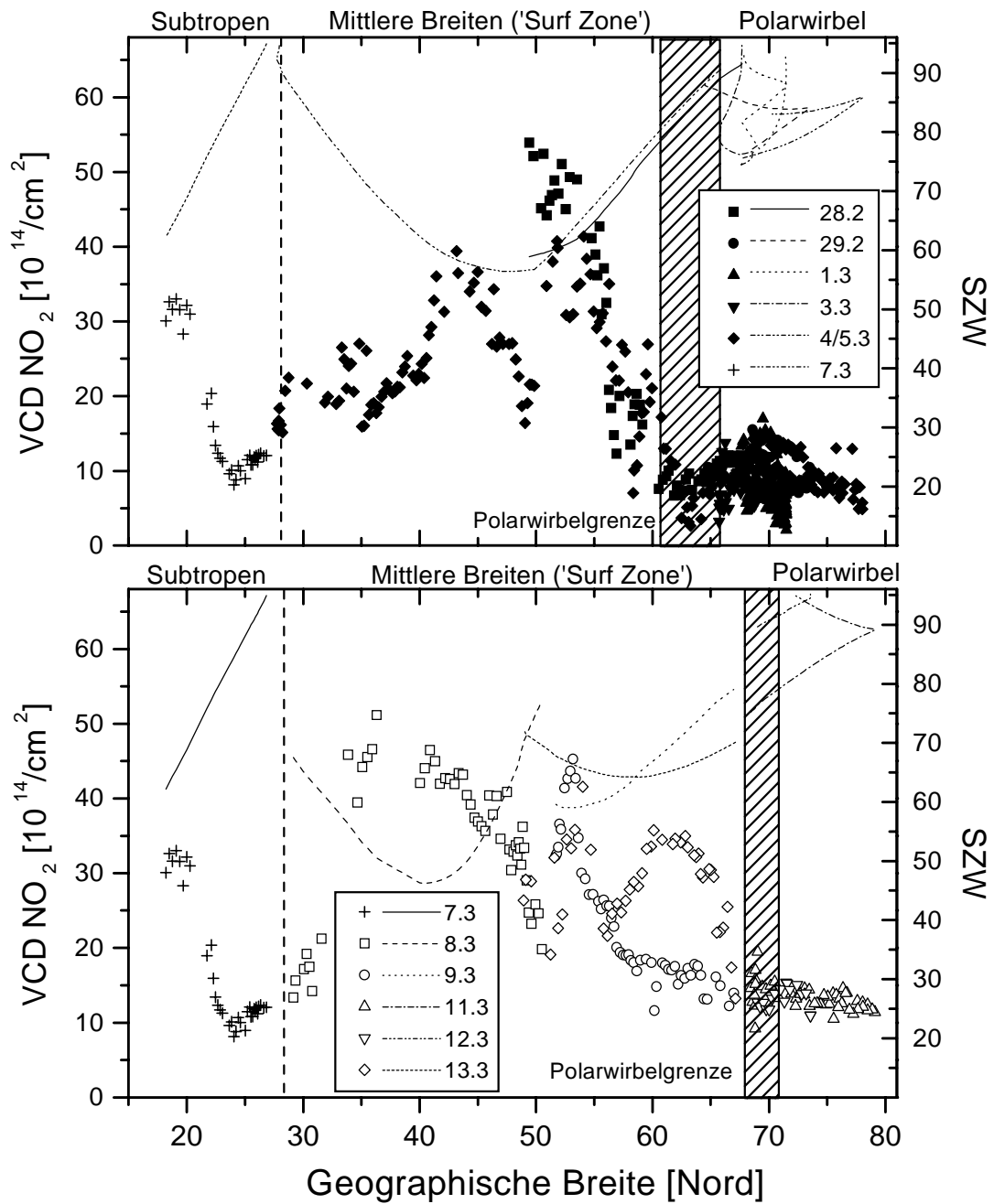


**Abbildung 2** Vertikale  $\text{NO}_2$ -Säulendichten am 11. und 17. Januar 1995. Geschlossene/ offene Symbole bezeichnen Messungen außerhalb/ innerhalb des Polarwirbels. Der jeweilige Sonnenzenitwinkel ist als Linie dargestellt.



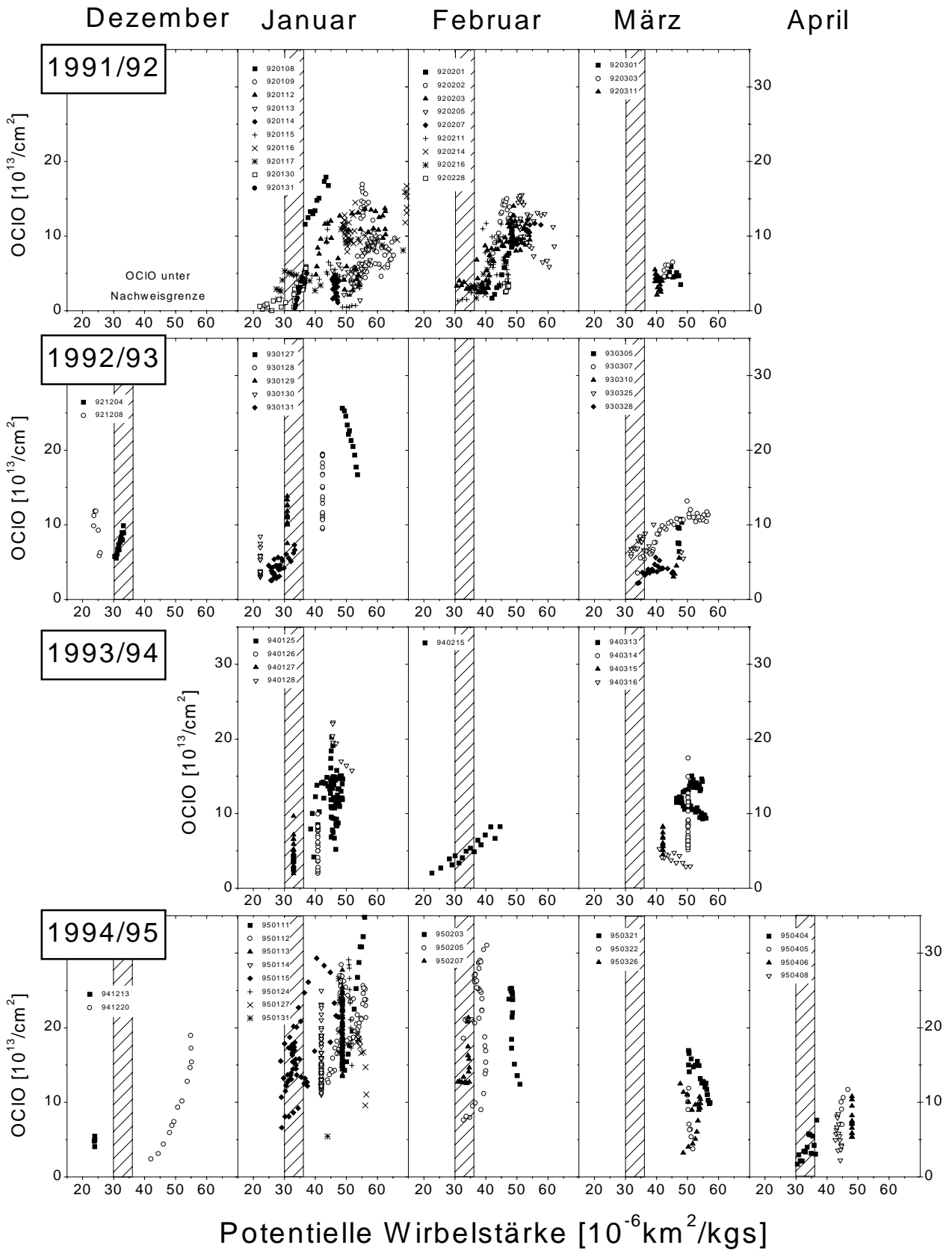
**Abbildung 3** Lage des Polarwirbels für den 11. und 17. Januar 1995, einschl. 10-Tage-Luftmassentrajektorien (475 K und 675 K) (Symbole bezeichnen jeweils den lokalen Mittag; durchgezogene und gestrichelte Linien für  $SZW > 90^\circ$  bzw.  $SZW < 90^\circ$ ), sowie Flugtrajektorie der Transall.

- 2.) Die Abhängigkeit der gemessenen  $\text{NO}_2$  Säulendichten von der geographischen Breite und der Jahreszeit wurde weiterhin detailliert untersucht. Ausgangspunkt waren dabei einige Transallflüge die von etwa  $22^\circ \text{ N}$  bis zum Nordpol reichten. Dabei wurden drei markante Zonen des stratosphärischen  $\text{NO}_2$  beobachtet: (a) von etwa  $22^\circ \text{ N}$  bis  $55^\circ \text{ N}$  erstreckt sich die sogenannte 'surf zone' mit zeitlich und räumlich sehr veränderlichen  $\text{NO}_2$  Konzentrationen ein Verhalten das im wesentlichen auf die atmosphärische Dynamik zurückzuführen ist, (b) bei etwa  $55^\circ \text{ N}$  bis  $65^\circ \text{ N}$  liegt das sogenannte 'Noxon Cliff' eine starke Abnahme in der  $\text{NO}_2$  Säulenkonzentration im wesentlichen bedingt durch Umwandlung von  $\text{NO}_2$  in langlebigeres  $\text{N}_2\text{O}_5$  und (c) eine weitere Abnahme der  $\text{NO}_2$ -Säule durch die verstärkte heterogene Umwandlung von  $\text{NO}_2$  durch heterogene Reaktion von  $\text{N}_2\text{O}_5$ ,  $\text{BrONO}_2$ ,  $\text{ClONO}_2$  in  $\text{HNO}_3$  (Abbildung 4) [Pfeilsticker et al., 1999].



**Abbildung 4** Vertikale NO<sub>2</sub>-Säulendichte vom März 1992: Aufteilung der Nordhemisphäre in drei Bereiche, in denen die NO<sub>2</sub>-Säule unter unterschiedlicher Beeinflussung steht. Der jeweilige Sonnenzenitwinkel ist im oberen Teil der Abbildungen als Linie dargestellt (rechte y-Achse).

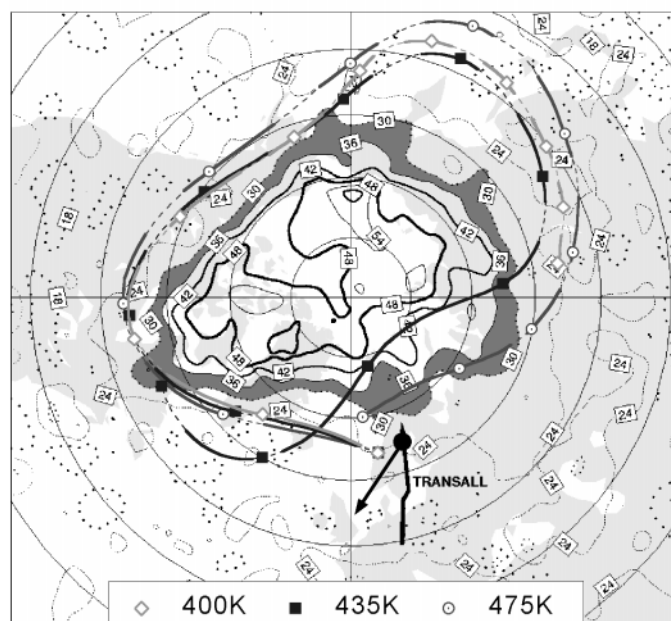
- 3.) Die gemessenen erhöhten OCIO-Säulendichten innerhalb des Polarwirbels zeigten in den vier Wintern verschiedene zeitliche Verläufe der Halogenaktivierung, ein Ausdruck der unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen (Abbildung 5).



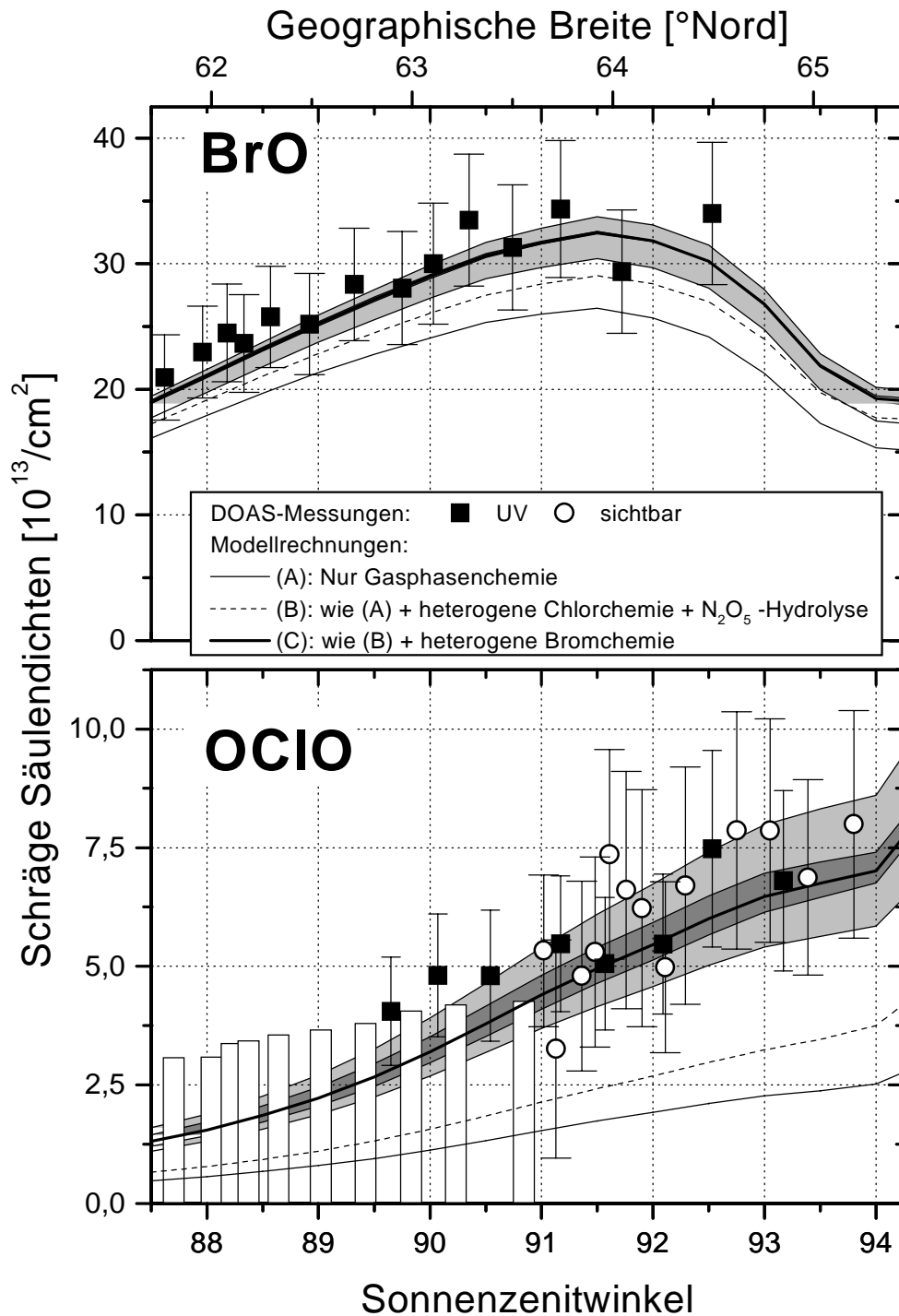
**Abbildung 5** Schräge OCIO-Säulen für  $88^\circ < \text{SZW} < 92^\circ$  als Funktion der potentiellen Wirbelstärke (475 K). Der Polarwirbelrand (30 - 36 PVU) ist schraffiert dargestellt.



Signifikante OCIO-Mengen wurden gelegentlich jedoch auch außerhalb des Polarwirbels gemessen (z.B. am 13.12.1994; für Lage des Polarwirbels zum Zeitpunkt der Beobachtung siehe Abbildung 6). Dabei zeigten photochemische Modellrechnungen für die untersuchten Luftmassen, daß meßbare Mengen an OCIO außerhalb des Polarwirbels nur durch heterogene Bromreaktionen an moderat kalten Schwefelsäureaerosolen erklärbar sind, deren Konzentration aber nicht notwendigerweise nach einem vorhergehenden Vulkanausbruch erhöht sein muß (Abbildung 7). Hierbei zeigte sich, daß die heterogene Bromchemie eine Verschiebung des Anteils des langlebigeren Bromnitrats zugunsten der kurzlebigeren Bromverbindungen HOBr und BrCl bewirkt, wodurch eine schleichende Halogenaktivierung außerhalb des Polarwirbels resultiert. Daher bieten die heterogenen Bromreaktionen an Schwefelsäureaerosolen gerade im Bereich zwischen ‚Noxon Cliff‘ und Polarwirbelrand (erleichterter meridionaler Transport) eine mögliche Erklärung für die zum Teil unverstandenen Ozonverluste bereits mitten im Winter [Erle et al., 1998].

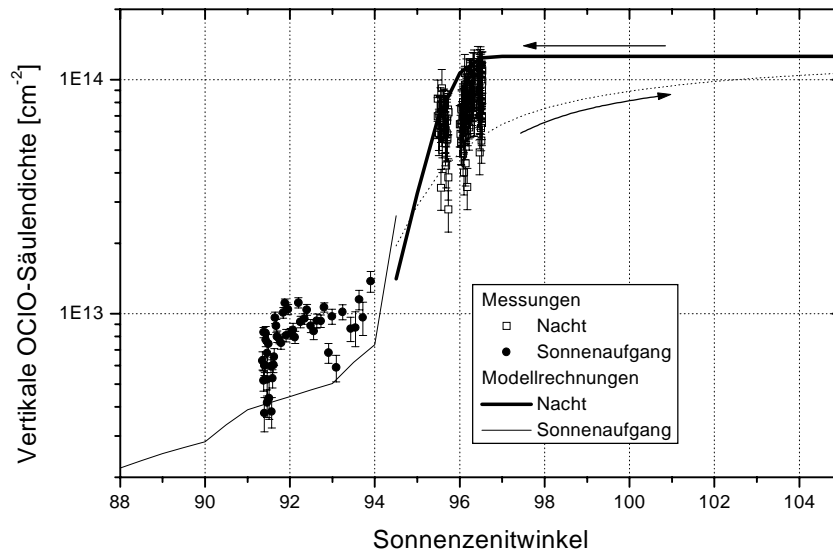


**Abbildung 6** wie Abbildung 3, aber für den 13. Dezember 1994. Eingezeichnet sind zusätzlich die 10-Tage-Luftmassentrajektorien (400 K, 435 K und 475 K) für den Endpunkt Orlandet ( $63.7^{\circ}\text{N}/9.6^{\circ}\text{O}$ ) (Symbole bezeichnen jeweils den lokalen Mittag, durchgezogene und gestrichelte Linien, wenn  $\text{SZW} > 90^{\circ}$  bzw.  $\text{SZW} < 90^{\circ}$ ), Flugtrajektorie der Transall, der Ort der Beobachtungen und der Sonnenazimutwinkel.

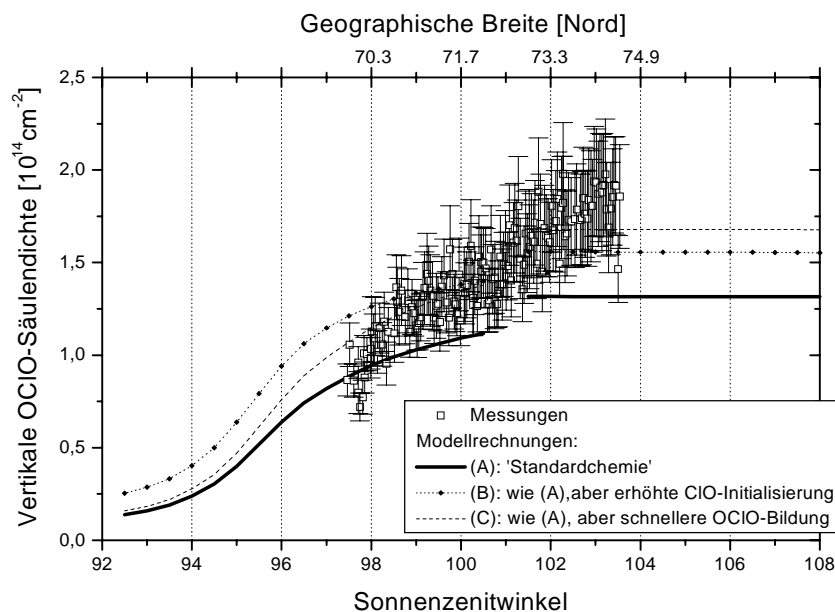


**Abbildung 7** Vergleich der gemessenen und modellierten differentiellen schrägen BrO- und OCIO-Säulendichten als Funktion des Sonnenzenitwinkels. Die geographische Breite ist an der oberen x-Achse gezeigt. Die weißen Balken zeigen die obere Grenze der OCIO-Säulendichte des Mainzer DOAS-Instruments. Die hellgrau schattierten Flächen zeigen den Effekt der Verdopplung bzw. Halbierung der Aerosoloberfläche, die dunkelgrau schattierten Flächen den Effekt der Reduzierung bzw. Erhöhung der Temperaturen um  $\pm 3$  K.

- 4.) Weiterhin wurde auch die Bildung von OCIO in der Dämmerung sowie in der beginnenden Nacht mit Hilfe der Himmelsstreulicht und direkten Mondlichtmessungen sowie photochemischen Modellrechnungen untersucht (Abbildung 8 und 9). Dabei ließ sich eine obere und untere Grenze für den bisher nur unzureichende bekannten, und ozonabbauende Kanäle 2 und 3 Reaktion  $\text{BrO} + \text{ClO} \rightarrow \text{OCIO} + \text{Br}$ ,  $\text{Br} + \text{Cl} + \text{O}_2$ ,  $\text{BrCl} + \text{O}_2$  abschätzen [Erle, 1999].



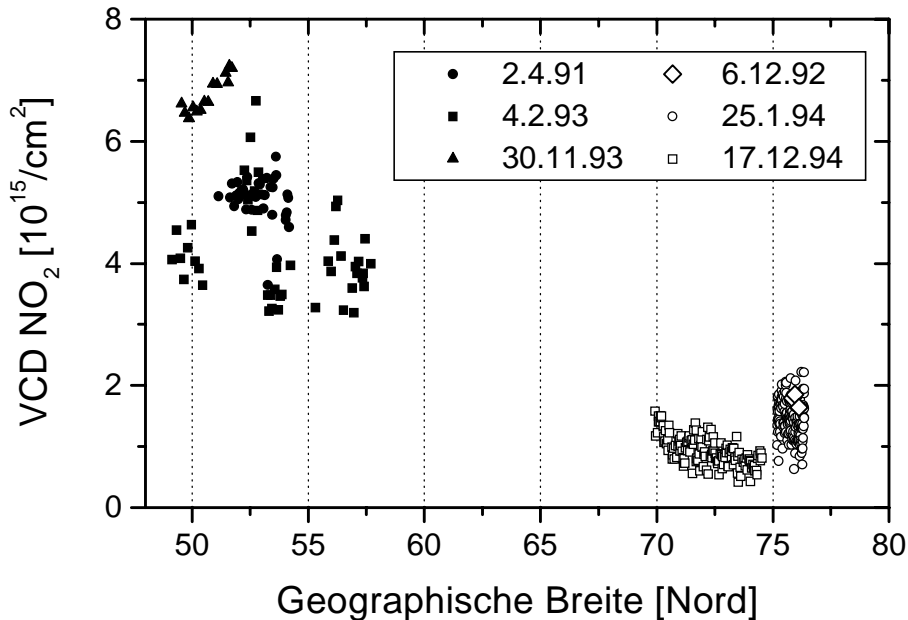
**Abbildung 8** Gemessene und modellierte vertikale OCIO-Säulendichten am 25. Januar 1994. Dicke durchgezogene/gestrichelte Linie bezeichnet Modellrechnungen kurz vor Sonnenauf- bzw. nach Sonnenuntergang, wobei die Nachtmessungen kurz vor Sonnenaufgang stattfanden



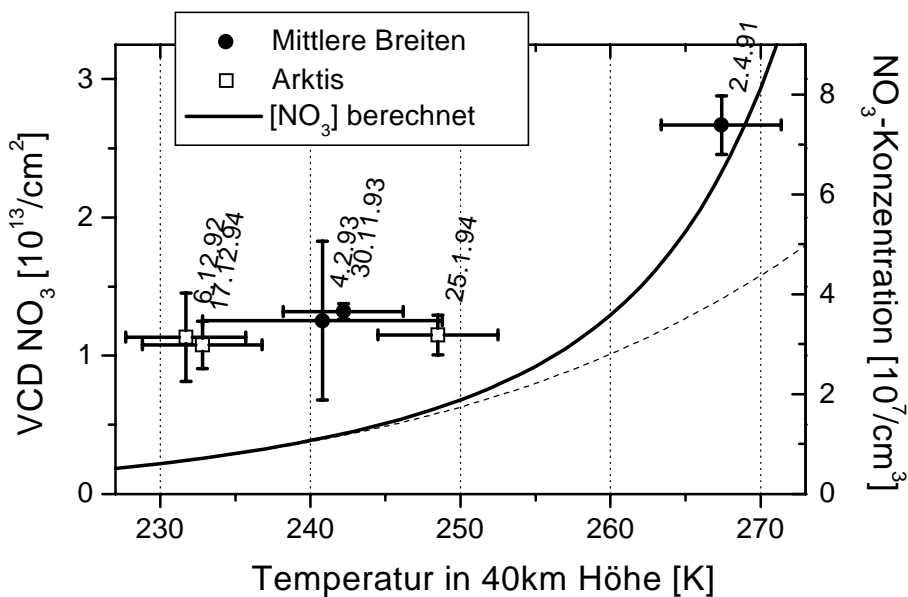
**Abbildung 9** wie Abbildung 8, aber für den 17. Dezember 1994. Erhöhung des Verhältnisses  $\text{OCIO}/\text{BrCl}$  (200 K) = 10.1 auf 13.0<sup>1</sup>.

<sup>1</sup> Veränderung des Verzweigungsverhältnisses ( $\text{BrCl}:\text{ClOO}:\text{OCIO}$ ) von 0.057:0.366:0.577 (Modellauf (A)) [DeMore et al., 1997] zu 0.049:0.314:0.637 (Modellauf (B)).

5.) Die mit Hilfe von Mond-Direktlichtmessungen untersuchte Ozonchemie in der Dunkelheit zeigte die Bedeutung der  $\text{NO}_2$ - und  $\text{NO}_3$ -Moleküle für die stratosphärische Stickstoffchemie (Abbildung 10 und 11). Die ungewöhnliche Variation der mit Mondlicht in Dunkelheit und in der oberen Stratosphäre liegenden  $\text{NO}_3$  Schicht rührt vermutlich von dem Transport von  $\text{NO}_x$ -reichen Luftmassen aus der Mesosphäre in die obere Stratosphäre her, welcher durch brechende Schwerewellen in den winterlichen Polargebieten verursacht wird [Erle et al., 1999].

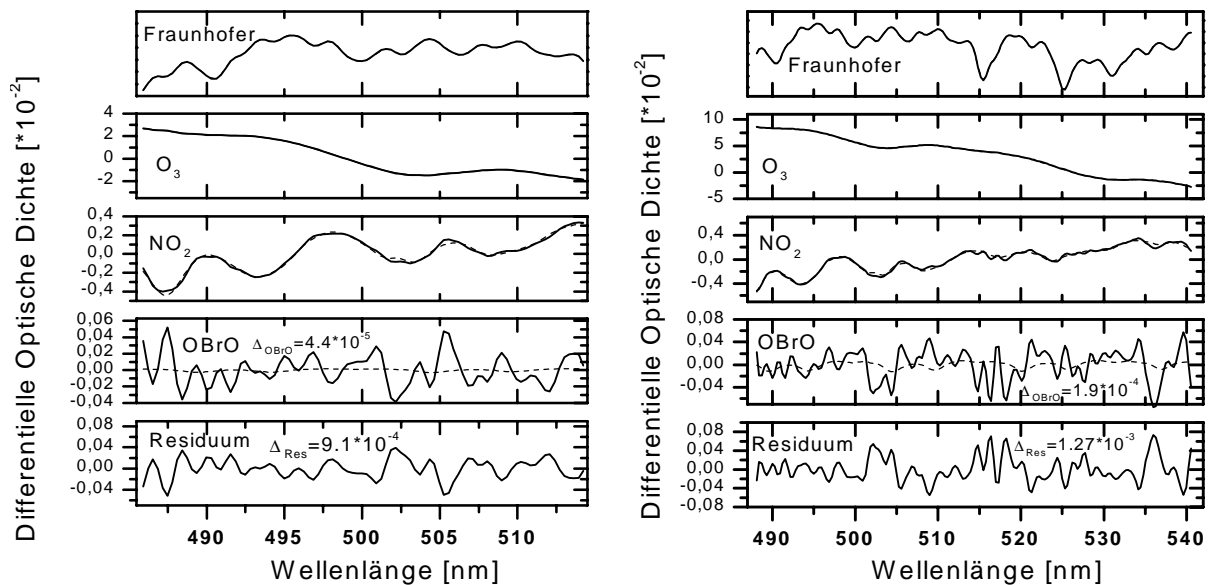


**Abbildung 10** Vertikale  $\text{NO}_2$ -Säulendichte während der Nacht für die sechs durchgeführten Mond-Direktlichtmessungen als Funktion der geographischen Breite. Geschlossene/offene Symbole bezeichnen Messungen außerhalb/innerhalb des Polarwirbels



**Abbildung 11** Vertikale  $\text{NO}_3$ -Säulendichten als Funktion der Temperatur in 40 km Höhe, sowie die in 40 km Höhe nach Gleichung 8.1 berechnete  $\text{NO}_3$ -Konzentration (dicke Linie), sowie unter Vernachlässigung des thermischen Zerfalls von  $\text{N}_2\text{O}_5$  (gestrichelte Linie).

- 6.) Weiterhin konnten mit den Mond-Direktlichtmessungen obere Grenzen für das Auftreten von OBrO bestimmt werden (Abbildung 12), ein Befund der in Einklang mit photochemischen Modellrechnungen ist, aber im Widerspruch zu neueren Beobachtungen stehen [Erle *et al.*, paper in prep.].



**Abbildung 12** Differenzielle Absorptionsspektren von  $O_3$ ,  $NO_2$  und  $OBrO$  am 4. Februar 1993 aus dem Wellenlängenbereich von 485,9-514,2 nm (a), sowie dem Bereich von 488,1-540,5 nm (b). In beiden Fällen konnte  $OBrO$  nicht eindeutig identifiziert werden, wobei die Reststrukturen in beiden Fällen ungefähr 0.1% aufweisen.

Gestützt auf die optimistischen (pessimistischen) Annahmen im Fall A (Fall B) kann abgeschätzt werden, daß 16% (56%) des verfügbaren  $Br_Y$  in Form von  $OBrO$  vorliegen könnten (siehe Tabelle 1). Ähnliche Resultate erhält man für die anderen Meßflüge. Folglich ist ein nennenswerter Beitrag von  $OBrO$  zum gesamten  $Br_Y$  aufgrund der vorliegenden Messungen nicht auszuschließen, wenngleich die hier vorgestellten Obergrenzen eine kleinere Rolle von  $OBrO$  nahelegen als einigen neueren Beobachtungen gemutmaßt wird.

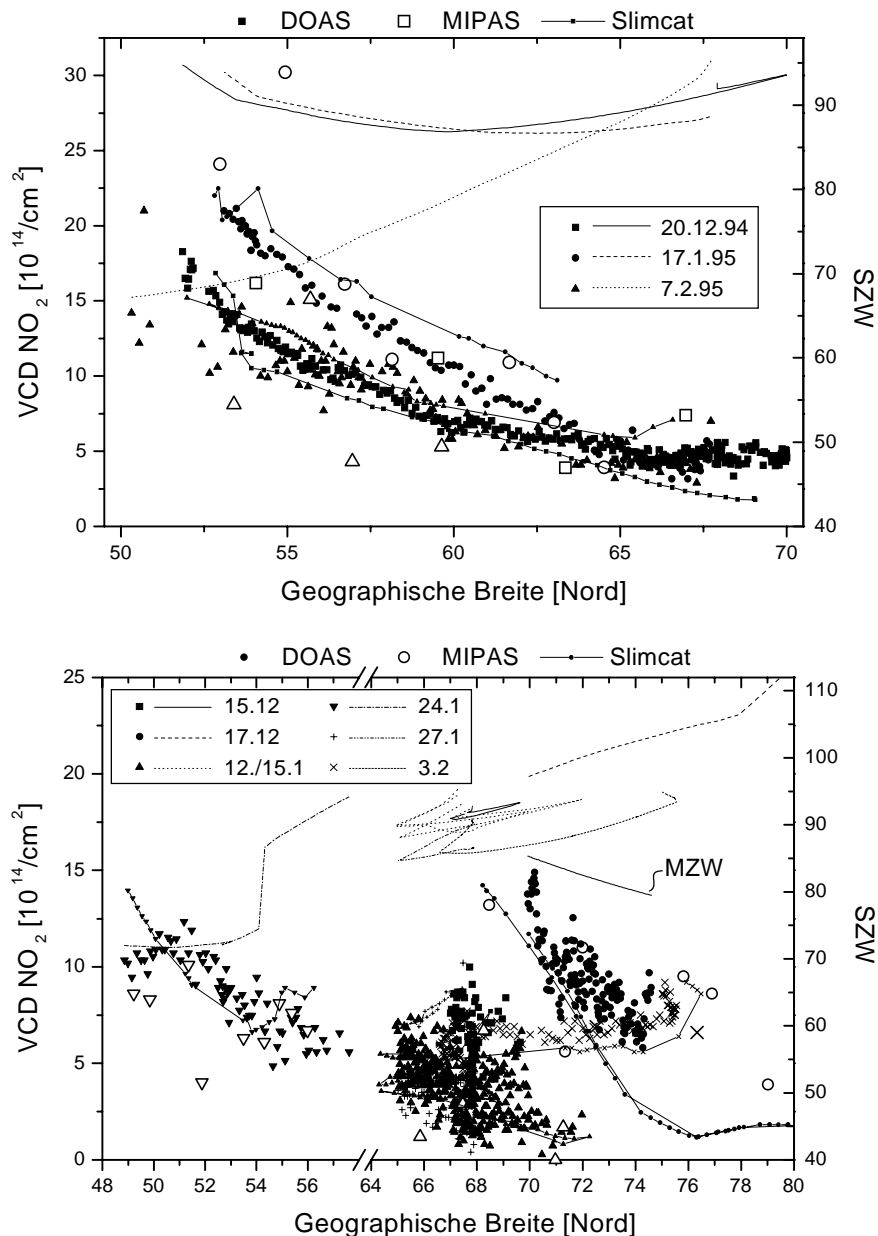
**Tabelle 1** Annahmen bei der Berechnung der aus den Fitergebnissen abgeleiteten Obergrenzen der  $OBrO$ -Säule

Annahme	Fall A	Fall B
Größe der Reststruktur	$9 \times 10^{-4}$	$1.2 \times 10^{-3}$
Vertikale $Br_Y$ -Säulendichte	$4.41 \times 10^{13}$	$3.46 \times 10^{13}$
$OBrO$ -Wirkungsquerschnitt	$\sigma_{OBrO} = 2 \times \sigma_{OCIO}$	$\sigma_{OBrO} = \sigma_{OCIO}$
max. $OBrO/Br_Y$	16% ( $= 7.12 \times 10^{13} / 4.41 \times 10^{13}$ )	56% ( $= 19.3 \times 10^{13} / 3.46 \times 10^{13}$ )

- 7.) Partitioning der  $NO_y$  Verbindungen während eines Polarwinters: Mit Hilfe der während eines Winterhalbjahres von den unterschiedlichen Fernerkundungsinstrumenten gemessenen hauptsächlichen  $NO_y$  Verbindungen ( $NO_2$ ,  $ClONO_2$ ,  $HNO_3$ ) sowie einer Abschätzung der totalen  $NO_y$  Menge aus einer Eichung der  $N_2O$  Menge und der vom LIDAR gemessenen Aerosoloberkante konnten für vier Meßperioden im Winter 1994/95 typische Situa-

tionen der  $\text{NO}_y$  Verteilung des stratosphärischen Winterhalbjahres studiert werden. Das dabei abgeleitete Bild bestätigt die bisherigen Sicht der chemischen und physikalischen Prozesse der stratosphärischen Stickstoffverbindungen [Pfeilsticker et al., 1998].

- 8.) In diesem Teilprojekt wurden zusammen mit dem Forschungszentrum Karlsruhe u.a. die Breitenabhängigkeit der auf zahlreichen Meßflügen vom dem DOAS- und erstmalig von dem MIPAS Instrument gemessenen  $\text{NO}_2$ -Säulen untereinander mit dreidimensionalen Modellrechnungen verglichen. Dabei zeigte sich, daß die erstmalig mit dem MIPAS-Instrument gemessenen  $\text{NO}_2$  Säulen insbesondere im Winter i.a. sehr gut mit den Messungen von des DOAS Instruments sowie den Modellrechnungen übereinstimmt (Abbildung 13) [Glatthor et al., 1998].



**Abbildung 13** Vertikale  $\text{NO}_2$ -Säulen gemessen bzw. berechnet von DOAS, MIPAS und SLIMCAT während der Wintermonate außerhalb (oben) und innerhalb des Polarwirbels (unten). Der jeweilige Sonnenzenitwinkel ist im oberen Teil der Abbildungen als Linie dargestellt (rechte y-Achse). Zu beachten ist die unterbrochene x-Achse zwischen  $58^\circ$  und  $64^\circ$  nördlicher Breite!

Allerdings legen die Messungen vom März nahe, daß gerade in diesem Zeitraum die gemessenen  $\text{NO}_2$ -Säulen von Chemiemodellen unterschätzt und damit die Denoxifizierungsmechanismen in Modellen überschätzt werden (Abbildung 14). Mögliche Erklärungen für diese Diskrepanz sind (a) eine langsamere  $\text{N}_2\text{O}_5$ -Hydrolyse im Temperaturbereich zwischen 200 und 210 K und (b) eine langsamere Reaktion von  $\text{NO}_2 + \text{OH} \rightarrow \text{HNO}_3$ , bzw. schnellere Reaktion von  $\text{HNO}_3 + \text{OH} \rightarrow \text{NO}_3 + \text{H}_2\text{O}$ , wie sie von neueren Messungen nahegelegt werden.

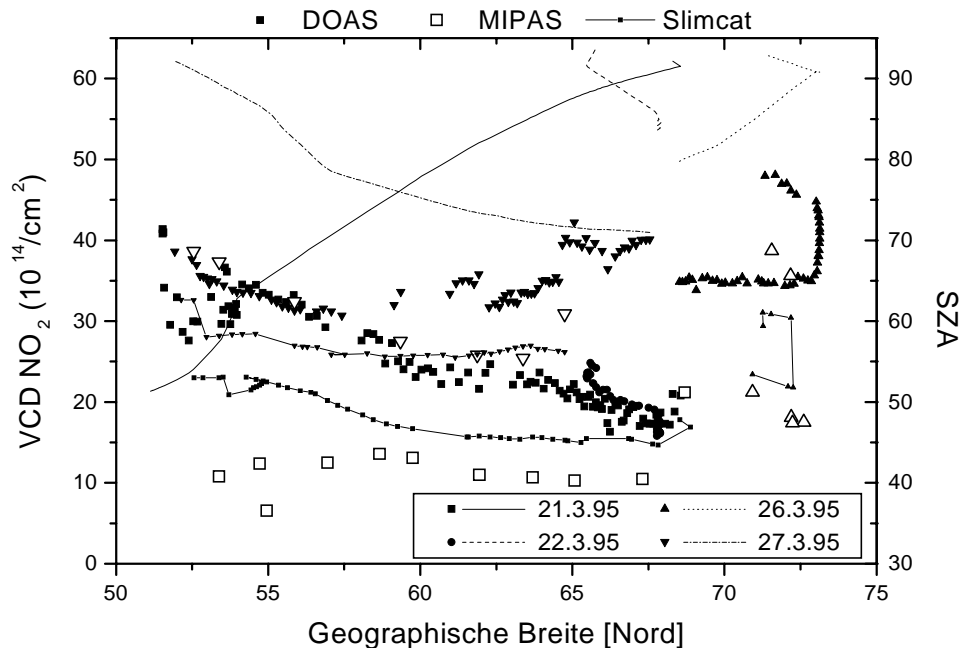


Abbildung 14 wie Abbildung 13, aber für März 1995.

## 5.) Wissenschaftliche Veröffentlichungen (von Mitarbeitern des IUP im Rahmen des Vorhabens angefertigt)

1. Barth, V., and A. Zahn, The oxygen isotope composition of carbon dioxide in the middle atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 102, 12995-13007, 1997.
2. Erle, F., DOAS-vis Messungen auf dem Forschungsflugzeug Transall in den arktischen Wintern 93/94 und 1994/95, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1995.
3. Erle, F., K.Pfeilsticker, and U.Platt, Transall DOAS-measurements of nighttime column abundances of stratospheric  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{OCIO}$ , and  $\text{NO}_3$ , Proc. 4.European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1997.
4. Erle, F., A.Grendel, D.Perner, K.Pfeilsticker, and U.Platt, Evidence of heterogeneous bromine chemistry on cold stratospheric sulfate aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 4329-4332, 1998.

5. Erle., F., Untersuchungen zur Halogenaktivierung der winterlichen arktischen Stratosphäre anhand flugzeuggestützter spektroskopischer Messungen, Dissertation, Universität Heidelberg, 1999.
6. Pfeilsticker, K., C.E. Blom, R. Brandtjen, H. Fischer, N. Glatthor, A. Grendel, T. Gulde, M. Höpfner, D. Perner, Ch. Piesch, U. Platt, W. Renger, J. Sessler, and M. Wirth, Aircraft-borne Detection of the Stratospheric Column Amounts of O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, OClO, ClNO<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub>, and Aerosols around the Arctic Vortex (79°N to 39°N) during Spring 1993, 1. Observational data, *J. Geophys. Res.*, 102, 10801-10814, 1997.
7. Pfeilsticker, K., F. Erle, and U. Platt, Absorption of solar radiation by atmospheric O<sub>4</sub>, *J. Atmos. Sci.*, 1997.
8. Pfeilsticker, K., F. Erle, U. Platt, C.E. Blom, and W. Renger, Aircraft-borne measurements of the NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, and ClNO<sub>3</sub> partitioning during the Arctic winters 1991-1995, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 567-570, 1998
9. Pfeilsticker, K., F. Erle, O. Funk, L. Marquard, T. Wagner, and U. Platt, Optical path modifications due to tropospheric clouds: Implications for zenith scattered sky measurements of stratospheric gases, *J. Geophys. Res.*, 103, 25323-25335, 1998.
10. Wagner, T., K., F. Erle, L. Marquard, C. Otten, K. Pfeilsticker, T. Senne, J. Stutz, and U. Platt, Cloudy Sky Optical Paths as derived from DOAS Observations, *J. Geophys. Res.*, 103, 25307 - 25321, 1998.
11. Pfeilsticker, K., F. Erle, and U. Platt, Observation of the stratospheric NO<sub>2</sub> latitudinal distribution in the northern winter hemisphere, *J. Atmos. Chem.*, 32, 101-120, 1999.
12. Zahn, A., V. Barth, K. Pfeilsticker, and U. Platt, In-situ potential vorticity and ozone as tracers for stratospheric-tropospheric exchange, in: Polar stratospheric ozone, Air pollution research report 56, Proceedings of the third European workshop, 18-22 September 1995, Schliersee, Germany, 56-60, 1996.
13. Zahn, A., V. Barth, R. Neubert, K. Pfeilsticker, and U. Platt, In-situ HDO, H<sub>2</sub><sup>18</sup>O, <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, and C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O measurements to study PSC-sedimentation and isotope exchange reactions in the stratosphere, in: Polar stratospheric ozone, Air pollution research report 56, Proceedings of the third European workshop, 18-22 September 1995, Schliersee, Germany, 61-66, 1996
14. Zahn, A., V. Barth, K. Pfeilsticker, and U. Platt, Deuterium, Oxygen-18, and Tritium as tracers for water vapour transport in the lower stratosphere and tropopause region, in press, *J. Atmos. Chem.*, 25-47, 1998
15. Zahn, A., V. Barth, and U. Platt, Atmospheric water vapour transport and isotope exchange reactions using upper tropospheric HDO, HTO, H<sub>2</sub><sup>18</sup>O, <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, and C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O measurements, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 639-642, 1998
16. Zahn, A., R. Neubert, and U. Platt, Fate of long-lived trace species near the northern hemispheric tropopause, Part I: carbon dioxide, methane, ozone, sulphur hexafluoride, *J. Geophys. Res.*, in press, 1999
17. Zahn, A., Evidence for a mixing layer above the extratropical tropopause based on ozone (O<sub>3</sub>), stratospheric tracer (SF<sub>6</sub>) ages and water vapor isotope (D, T) tracers, *J. Geophys. Res.*, (accepted), 1999.



18. Zahn, A., K. Pfeilsticker, and U. Platt, A simple airborne technique for determining potential vorticity at high resolution, *J. Appl. Meteorol.*, (submitted) 1999.
19. Zahn, A., V. Barth, K. Pfeilsticker, and U. Platt, Airborne high-resolution ozone and potential vorticity to study stratospheric-tropospheric exchange, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 183-186, 1998
20. Zahn, A., V. Barth, and U. Platt, Atmospheric water vapour transport and isotope exchange reactions using upper tropospheric HDO, HTO, H<sub>2</sub><sup>18</sup>O, <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, and C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O measurements, reviewed paper, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 639-642, 1998.
21. Zahn, A., V. Barth, and U. Platt, Fate of long-lived trace species near the northern hemispheric tropopause, 2: The isotopic composition of carbon dioxide (<sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>, and C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O), *J. Geophys. Res.*, (revised) 1999.

# Ozonforschungsprogramm

Abschlußbericht  
zum Forschungsvorhaben

Erweiterte Interpretation der mit dem Transall-Lidar  
gewonnenen Datensätze

gefördert durch

Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung  
und  
Technologie (BMBF)

Förderkennzeichen 01 L09531/0  
Laufzeit 01/96-12/98

Projektleiter: Wolfgang Renger  
Autor: Dr. Harald Flentje

DLR, Arbeitsgruppe Lidar  
Oberpfaffenhofen, Postfach 1116  
82234 Weßling

Dezember 1998

# Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben

## Erweiterte Interpretation der mit dem Transall-Lidar gewonnenen Datensätze

Förderkennzeichen 01 L09531/0

### 1 Vorhabensbeschreibung

#### 1.1 Wissenschaftliche Ziele des Teilprojekts

Der Forschungsantrag hatte das Ziel, die mit dem Transall-Lidar in den Jahren 1990 - 1995 gewonnenen Daten, insbesondere durch den Vergleich mit Modellrechnungen, weitergehend zu interpretieren, als es im Rahmen der vorherigen Auswertungen möglich war. Dabei sollte insbesondere Aufschluß über die in der unteren Stratosphäre in der Nähe des Arktischen Polarwirbels ablaufenden dynamischen Prozesse gewonnen werden.

Der im Laufe des letzten Jahrzehnts beobachtete Rückgang der Ozon-Säulendichten in mittleren Breiten der nördlichen Hemisphäre ([*Stolarski et al. 92*]) war mit den bis Anfang der 90-er Jahre als maßgeblich angesehenen chemischen und dynamischen Prozessen in der unteren und mittleren Stratosphäre nicht zu erklären. Neben dem Auftreten Leewellen-induzierter „polar stratospheric clouds“ (PSC), das auf den Bereich des kalten Polarwirbels beschränkt ist, erwies es sich als notwendig, zur Interpretation der Beobachtungen Transportprozesse über den Rand des Polarwirbels einzubeziehen [z.B. *Norton und Chipperfield 95*]. Da wiederholt bestätigt wurde, daß auch der Arktische Polarwirbel, wenn auch in geringerem Maße als der Antarktische, nach seiner Entstehung im Frühwinter bis zu seiner Auflösung beim Übergang zur Sommerzirkulation eine weitgehend abgeschlossene Luftmasse bildet, stellte sich die Frage, welche Mechanismen für den Austausch von Luftmassen zwischen dem Polarwirbel und mittleren Breiten in Frage kommen. Mit Hilfe der Lidar-Messungen, die Strukturen am Wirbelrand mit hoher Auflösung und zugleich über einen großen Bereich erfassen, sollte daher geklärt werden,

- welche dynamischen Prozesse den erforderlichen Luftmassenaustausch über den Wirbelrand quantitativ ermöglichen,

- ob und wie genau diese Transporte numerisch simuliert werden können, d.h. auf welchen Skalen und unter wie genau zu definierenden Randbedingungen sie ablaufen,
- wann und in welcher Größenordnung sie stattfinden, und
- welche Rolle sie in der näheren Zukunft spielen könnten.

Die Stabilität des polaren Wirbels bzw. die Durchlässigkeit seines Randes, des „Polar Night Jet“, kann experimentell und numerisch an der Häufigkeit, Ausdehnung, Entstehung und Entwicklung der sporadisch auftretenden Filamente untersucht werden. Vertikal geneigte Filamente treten relativ oft als „laminae“ (dünne Schichten) in gemessenen Vertikalprofilen von z.B. Wasserdampf oder Ozon auf. Einzelne Profile lassen jedoch keine Rückschlüsse auf die Ausdehnung und die Verteilung der Filamente zu. Dies ermöglichen die 2-dimensionalen Lidar Schnitte der Transall Kampagnen, die jeweils eine repräsentative Momentaufnahme der Strukturierung der unteren Stratosphäre vermitteln. Die Rolle der relativ kleinskaligen Filamente bei der Reduktion der Ozon Gesamtsäulendichte in mittleren Breiten ist quantitativ noch wenig bekannt.

Basierend auf der bereits geleisteten experimentellen Vorarbeit wurde zur Klärung dieser Fragen eine Zusammenarbeit mit dem Centre for Global Atmospheric Modelling (CGAM) der Universität Reading (UK) begonnen. Am CGAM wurden in den letzten Jahren zwei hochauflösende stratosphärische Transportmodelle entwickelt, die unter den Begriffen „Contour-Advection“ und „(Reverse) Domain Filling Trajectory“ bekannt sind. Diese wurden auf einer UNIX HP-Workstation der Arbeitsgruppe LIDAR am DLR Oberpfaffenhofen installiert und selbständig betrieben. Aufgrund der bei gleicher Auflösung wesentlich geringeren Rechenzeit und der kaum voneinander abweichenden Resultate beider Modelle wurden die Auswertungen weitestgehend mit dem Contour-Advection Modell durchgeführt.

## **1.2 Bezug zum Förderprogramm des BMBF**

Die durchgeführten Forschungsarbeiten stehen in direktem Zusammenhang mit folgenden vom BMBF geförderten Teilprojekten des Ozonforschungsprogramms als deutscher Beitrag zur Klima- und Atmosphärenforschung:

- a) CHORUS (**C**hemie der **O**zon **R**eduktion in der **U**nteren **S**tratosphäre)
- b) POLECAT (**P**olar Stratosphärische Wolken, **L**eewellen, **C**hemie, **A**erosole und **T**ransport)
- c) Trends des stratosphärischen Ozons über der nördlichen Hemisphäre.
- d) Struktur und Abgeschlossenheit des Polarwirbels.

Der Vergleich eines hochauflösenden stratosphärischen Transportmodells mit Meßdaten etwa gleicher Auflösung erleichtert die oft schwierige Trennung chemisch und dynamisch verursachter Spurenstoff-Variationen in der unteren Stratosphäre. Er trägt darüber hinaus dem großen Bedarf Rechnung, räumlich hochauflösende Transportmodule nach ihrer Validierung in Chemie-Transport- und Klimamodelle zu

implementieren, um mesoskalige Prozesse besser erfassen zu können. Darüber hinaus wird erwartet, daß sich die Erfahrungen und die neu entwickelte Software als sehr nützlich für die Interpretation der Ergebnisse zukünftiger Kampagnen, die unter ähnlichem Forschungsschwerpunkt stehen werden, erweisen.

## 2 Datensatz und Modellierung

In den hier zusammengestellten Untersuchungen werden entlang der Transall-Flugrouten mit dem DLR Lidar OLEX gemessene 2D-Schnitte der Ozonkonzentration und Partikel-Rückstreuung mit simulierten hochaufgelösten stratosphärischen Verteilungen der Ertel'schen potentiellen Wirbelstärke (Potential Vorticity - PV) als Luftmassen-Tracer verglichen. Anhand der auf 8 Flügen gemessenen Filamente sowie der häufig scharf ausgeprägten Wirbelgrenze wird die Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation quantifiziert. Aus den Simulationsrechnungen läßt sich der Mechanismus des Luftmassen-Austauschs über den Wirbelrand ermitteln und die Exportrate abschätzen. Dies gibt schließlich Hinweise auf den Einfluß dieser Transportprozesse auf den beobachteten Rückgang der Ozon-Säulendichten in mittleren Breiten der Nordhemisphäre.

Der Vergleich basiert darauf, daß sich Luftmassen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels im Allgemeinen deutlich hinsichtlich ihres Ozon- und Aerosolgehalts sowie ihrer potentiellen Wirbelstärke unterscheiden. Bei ungestörten stratosphärischen Bedingungen enthält die Wirbelluft relativ zur Luft mittlerer Breiten viel Ozon und wenige Partikel. Diese Signatur bleibt bei reinen Transportprozessen in der unteren Stratosphäre über einen Zeitraum von wenigen Tagen weitgehend erhalten, so daß beide Stoffe in guter Näherung als Tracer für die verschiedenen Luftmassen verwendet werden können. Sie können sich jedoch durch chemischen Ozonabbau und diabatisch erzeugte Temperaturschwankungen mitunter auch relativ schnell ändern, was die Zuordnung eines Luftmassentyps in solchen Perioden erschwert. Daher wurden Aerosol- und Ozongehalt der Wirbel- und Nicht-Wirbelluftmassen am Tag der Initialisierung des Modellaufs jeweils einzeln überprüft. Die potentielle Wirbelstärke als Maß für die differentielle Zirkulation einer Luftmasse weist im Polarwirbel hohe Werte, an dessen Rand einen großen Gradienten und außerhalb niedrige Werte auf. In Perioden stark nichtlinearer Dynamisierung der planetaren Welle ist der Wirbelrand wegen der damit einhergehenden Filamentierung vorübergehend nicht mehr wohldefiniert.

Aufgrund der in Bezug auf die typischen Skalen des Filamentierungs-Prozesses relativ kurzen Flugstrecken liefert eine statistische Analyse der einzelnen Meßflüge nur wenig nützliche Informationen. Daher wurde die Position der gemessenen Filamente jeweils direkt mit der Simulation verglichen. Die ermittelten Abweichungen sind im vierten Abschnitt in Form zweier Tabellen wiedergegeben. Der entscheidende Punkt ist dabei die Identifikation der transportbedingten „Filamente“ unter den gemessenen Strukturen, die prinzipiell mit einer gewissen Unsicherheit behaftet bleibt, da die PV nicht selbst gemessen wurde. Als Filament gilt entweder eine Luftmasse mit Wirbelcharakteristik, umgeben von Luft mittlerer Breiten (jeweils bezogen auf eine bestimmte isentrope Fläche), oder umgekehrt. Eine andere Unterscheidung ist mit dem verwendeten Modell nicht sicher möglich. Da die Messungen, die nur inner- oder außerhalb des Wirbels verliefen, keine repräsentativen Ozon- und Rück-

streuwerte der Wirbel- und Nichtwirbel-Luftmassen liefern, wurden zusätzlich Schwellenwerte für die Einordnung als Filament festgelegt. Unterhalb von  $\theta = 550\text{K}$  (etwa 22 km Höhe) muß die Differenz zwischen Filament und Umgebungsluft im Rückstreuverhältnis größer als 5% oder größer als 30% im Ozon-Mischungsverhältnis sein. Auch dies gewährleistet noch keine sichere Identifikation transportbedingter Filamente. Daher wurde zusätzlich die Entwicklung, die vertikale Anordnung und die Messungen des nächsten Tages (falls vorhanden), innerhalb und außerhalb des Wirbels einbezogen. Dies ergibt jeweils die aktuellen Ozon- und Rückstreuwerte für Wirbel- und Nicht-Wirbelluftmassen, und führt in den Messungen vom April auch zum Ausschluß einiger Strukturen, deren Herkunft nicht zuzuordnen ist. Oberhalb von 22 km ist keine Struktur eindeutig als Filament identifiziert worden. Dies liegt hauptsächlich an der horizontalen Homogenität und der Abnahme der Meßgenauigkeit mit der Höhe, da bisherige Beobachtungen auf die Zunahme der Häufigkeit von Filamenten in dieser Höhe hinweisen.

Da das Modell nur isentrope Advektion (auf Flächen gleicher potentieller Temperatur  $\theta$ ) beinhaltet, findet die Validierung der Contour Advection Rechnungen jeweils nur begrenzt auf einer isentropen Fläche statt, wenn sich auch hinterher im Gesamtbild dann gegebenenfalls eine vertikal korrelierte Anordnung der Filamente ergibt (wie es bei vertikal ausgedehnteren Filamenten zu erwarten ist).

## 2.1 Lidarmessungen

Im Winter 1994/95 liegt neben den Lidarmessungen der atmosphärischen Rückstreuung erstmals ein umfassender Satz von aus dem Transall-Flugzeug gemessenen 2D-Profilen der Ozonkonzentration im Bereich des Arktischen Wirbels vor. Dies vereinfacht die Entdeckung und unterstützt die Identifikation von Filamenten. Darum konzentrierten sich die Vergleiche auf den Zeitraum Dezember 1994 bis April 1995, in dem im Rahmen des Second European Stratospheric Arctic and Mid-Latitude Experiment (SESAME) bei 24 Flügen in 140 Flugstunden das Gebiet zwischen Grönland (20°W) und Novaja Semlja (50°O) und von 85°N bis 48°N befliegen wurde. Innerhalb des Wirbels verliefen 9, außerhalb 3 und über den Rand hinweg 7 Flüge (vgl. [Wirth und Renger 96]).

Einige Beispiele von Schnitten über den Wirbelrand sind in den Abbildungen 1, 4 und 6 gegeben, die das Ozon-Mischungsverhältnis und das atmosphärische Rückstreuverhältnis farbkodiert als Funktion der Breite und der potentiellen Temperatur wiedergeben. Das Rückstreuverhältnis  $\gamma$ , der Quotient aus Gesamtrückstreuung  $\beta_{\text{PART+MOL}}$  zu Molekülrückstreuung  $\beta_{\text{MOL}}$ , ist ein Maß für die Konzentration streuender Partikel in der Atmosphäre. In den Schnitten sind jeweils der Rand des Polarwirbels (am Rückstreuverhältnis) sowie Filamente unterschiedlicher vertikaler und horizontaler Ausdehnungen zu erkennen. Die typischen Größenskalen dieser Strukturen liegen bei etwa 1° horizontal und wenige km vertikal. Das entspricht etwa der Auflösung des in dieser Arbeit mit Analysen des United Kingdom Meteorological Office (UKMO) betriebenen Contour Advection Modells.

## 2.2 Contour-Advection (Konturen-Advektion)

Contour-Advection bezeichnet ein hochaufgelöstes stratosphärisches Transportmodell, das die Entwicklung ausgewählter Isolinien einer Erhaltungsgröße, in diesem Falle der Ertel'schen „Potentiellen Wirbelstärke“ (PV), verfolgt ([Dritschel 89]). Diese Konturlinien der PV, werden durch eine Anzahl von mit Luftpaketen besetzten Koordinatenpunkten gebildet, die während des Modelllaufs durch interpolierte Windvektoren advehiert werden. Ausgehend von relativ gering aufgelösten operationellen meteorologischen Analysen (UKMO) kann durch diese Methode, basierend auf der strömungsdynamischen Skalenkaskade, die Entwicklung des isentropen PV-Feldes hin zu kleineren Skalen simuliert werden.

Einschränkungen sind durch die nichtkonservativen Eigenschaften der potentiellen Wirbelstärke und die mit Unsicherheit behafteten Analysen, die zur Initialisierung und Advektion verwendet werden, gegeben. Die PV, die sich im wesentlichen durch dissipative und diabatische Vorgänge ändert, kann jedoch in der unteren und mittleren Stratosphäre über einen Zeitraum von ca. 1-2 Wochen, über den die Contour-Advection Integration läuft, als hinreichend konstant angenommen werden. In einer numerischen Sensitivitätsstudie haben [Methven und Hoskins 98] am CGAM die Einflüsse verschiedener Parameter auf die Genauigkeit von Contour-Advection Simulationen in der unteren Stratosphäre im Bereich des Arktischen Wirbels abgeschätzt. Danach ist die Auflösung von Contour-Advection-Simulationen dort höchstens etwa um einen Faktor 5.5 besser als die Auflösung des treibenden Windfeldes. Realistische Strukturen treten den numerischen Tests zufolge nur für Advektionsdauern zwischen mindestens 2-3 und höchstens 7-10 Tagen auf, während Filamente, die schmaler als 100 km ( $\approx 1$  Breitengrad) sind, von unterschiedlichen Modellläufen oft widersprüchlich reproduziert wurden.

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Rechnungen wurden standardmäßig auf 11 isentropen Flächen zwischen 350K (ca. 12 km) und 600K (ca. 24 km) mit jeweiligem Abstand von 25K durchgeführt. Das entspricht etwa dem Höhenbereich der Lidarmessungen. Die PV-Felder wurden durch tägliche Standardanalysen des Stratosphären-Troposphären Daten Assimilations-Systems des UK Met.-Office (UKMO) initialisiert und angetrieben, das mit einer horizontalen Auflösung von  $3.75^\circ$  Breite und  $2.5^\circ$  Länge in 22 logarithmischen Höhenstufen zwischen 1000 hPa und 0.32 hPa zur Verfügung steht ([Swinbank und O'Neill 94]). Anfangs- und Endzeit jeder Integration ist 1200 UT, so daß die Zeitverschiebung zu den Lidar-Messungen, die nur tagsüber stattfanden, stets unter 6h bleibt.

Es sei noch darauf hingewiesen, daß dieses Modell keine diabatischen Bewegungen (senkrecht zu isentropen Flächen) beinhaltet, und daß deshalb eine Skalenreduktion, d.h. Erhöhung der Auflösung und Erzeugung kleinskaliger Strukturen, nur auf isentropen Flächen, aber nicht in der vertikalen  $\theta$ -Koordinate stattfinden.

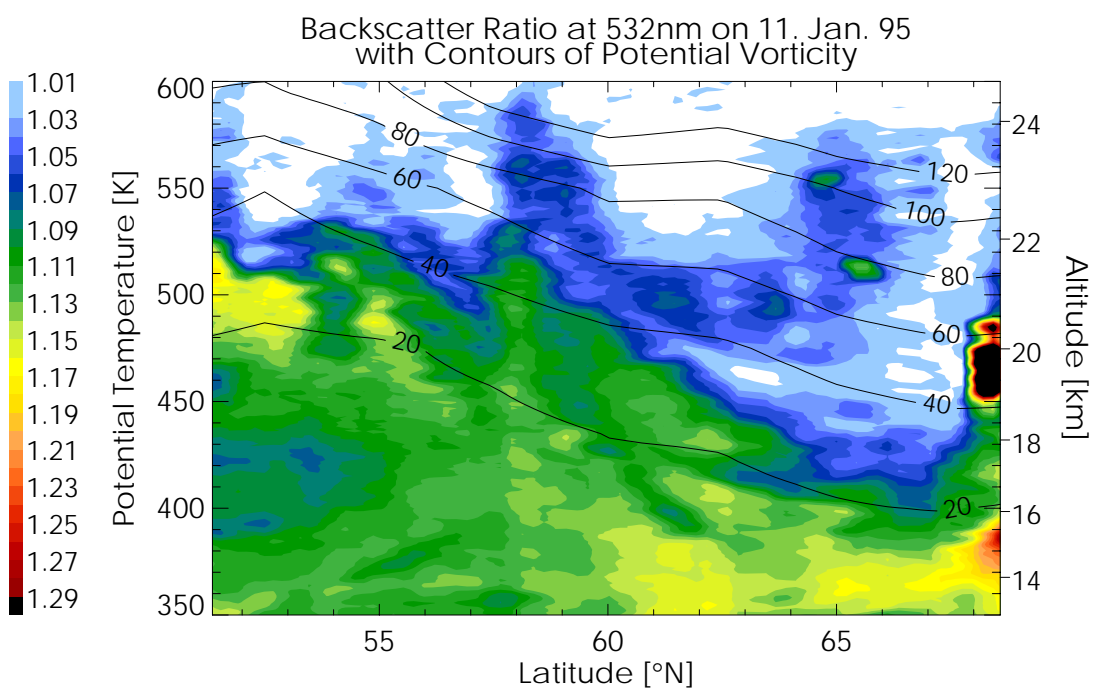
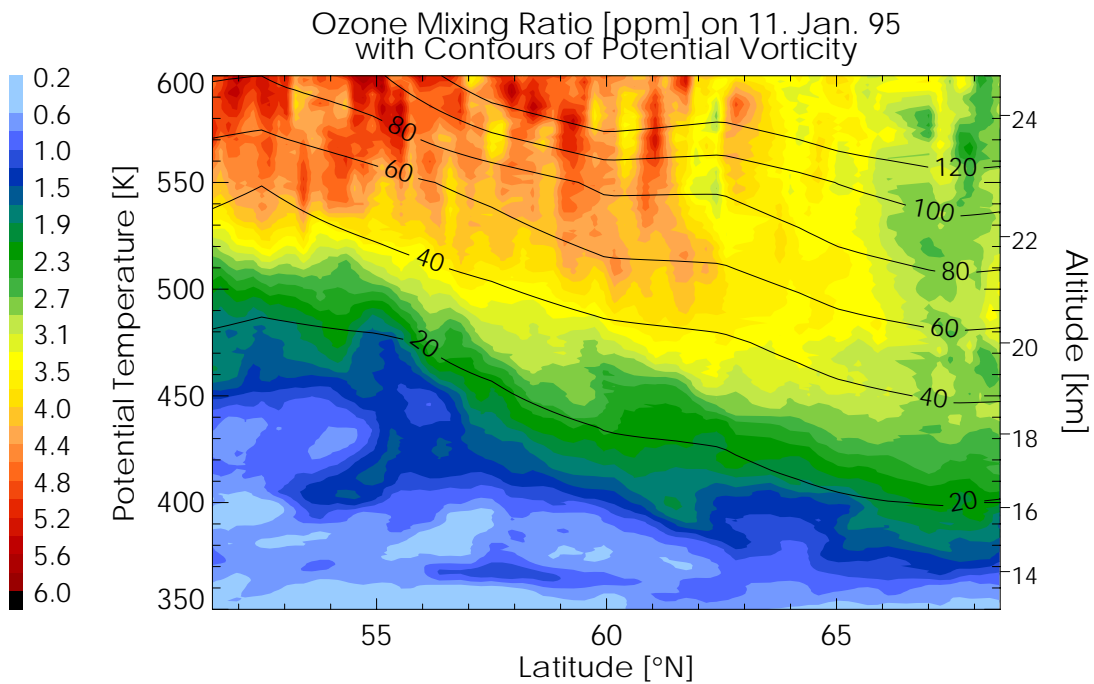
### 3 Ergebnisse

Der stratosphärische Winter 1994/95 war anfangs sehr kalt, enthielt ein „minor warming“ event im Februar und ging ab Ende März nur langsam in die Sommerzirkulation über [Naujokat und Pawson 96]. Entsprechend war der Polarwirbel meist recht stabil, unterbrochen von sporadischen Störungen durch verstärkte Aktivität planetarer (Rossby-) Wellen. Während des Brechens der planetaren Wellen wurde der Wirbel erodiert und an seinem Rand entstanden diverse Filamente, deren Signatur auch in den Ozon- und Rückstremessungen der Lidar-Kampagnen nachgewiesen werden konnte. So wurden in der Nähe des Wirbelrandes am 17. Dezember, 11. Januar, am 27. März und am 4., 5. & 8. April filamentartige Strukturen im Ozon- und Aerosolgehalt der unteren Stratosphäre beobachtet. Darüber hinaus bot die deutlich im Backscatter-Signal erkennbare Wirbelgrenze am 7. Februar, 21. März und 8. April an, die Genauigkeit der Contour-Advection Rechnungen zu überprüfen.

In Abbildung 1, 4 und 6 sind die Lidarschnitte des Ozon-Mischungsverhältnisses ( $[O_3]_{mix}$ ) und des Partikel Rückstreuverhältnisses  $\gamma$  bei 532 nm als Funktion der nördlichen Breite und der potentiellen Temperatur  $\theta$  für einige Flüge dargestellt, die in Zeiten erhöhter Wellenaktivität stattfanden. Zusätzlich sind Konturen der von ECMWF-Analysen (European Centre for Medium Range Weather Forecast) interpolierten potentiellen Wirbelstärke entlang der Flugstrecken überlagert, die einen Hinweis auf die Lage der Wirbelgrenze liefern.

Der Flug vom 11. Januar 1995 schnitt den Wirbelrand bei etwa  $65^\circ N$  in 400K und etwa  $60^\circ N$  in 500K. Den Lidarmessungen ist zu entnehmen, daß der meridionale Verlauf von PV und  $[O_3]_{mix}$  deutlich korreliert, der von PV und  $\gamma$  deutlich antikorreliert ist, was typisch für die ungestörte untere Stratosphäre ist. Der sehr hohe Wert des Rückstreu-Verhältnisses im Wirbel nördlich von  $67^\circ N$  um 460K ist auf dort auftretende PSC (Polar Stratospheric Clouds) zurückzuführen. Ozon-Filamente befinden sich bei  $[56^\circ-61^\circ N, 365K]$ , bei  $[53^\circ-55^\circ N, 400K]$  und ein vertikal ausgedehnteres von  $[61^\circ-62^\circ N, 400K]$  bis  $[\approx 58^\circ N, 475K]$ . Im Bereich des Wirbels nördlich von  $60^\circ N$  oberhalb 450K sind bei etwa  $65^\circ N$  erhöhte Rückstreuverhältnisse erkennbar, jedoch können wegen der im Wirbelinnern auftretenden PSC, Wirbel- und Nicht-Wirbel-Luftmassen in diesem Fall nicht sicher anhand des Rückstreu-Verhältnisses unterschieden werden. Abbildung 2 und 3 zeigen die dazugehörigen PV-Verteilungen der Contour-Advection Rechnungen, einmal als Vertikalschnitt durch den Polarwirbel von  $[80^\circ N, 30^\circ E]$  nach  $[40^\circ N, 10^\circ E]$  zwischen 350K und 600K (Abb. 2), im anderen Fall als isentrope Verteilung in 400K, einer polar stereographischen Projektion der nördlichen Hemisphäre überlagert (Abb. 3). Die 5-Tage-Integration und ähnlich deutlich auch die über 7 Tage zeigen in 400K schmale, vom Polarwirbel ausgehende PV-Filamente, die bis auf eine Verschiebung um  $0.5^\circ$  in nördlicher Richtung mit den beobachteten Ozon-Filamenten übereinstimmen. Auch die vertikale Anordnung des von 400K bis 475K reichenden Filaments wird durch die Simulation nach 5 und 7 Tagen mit der theoretisch möglichen Genauigkeit (entsprechend der Studie von [Methven und Hoskins 98]) wiedergegeben (vgl. Tabelle 1).

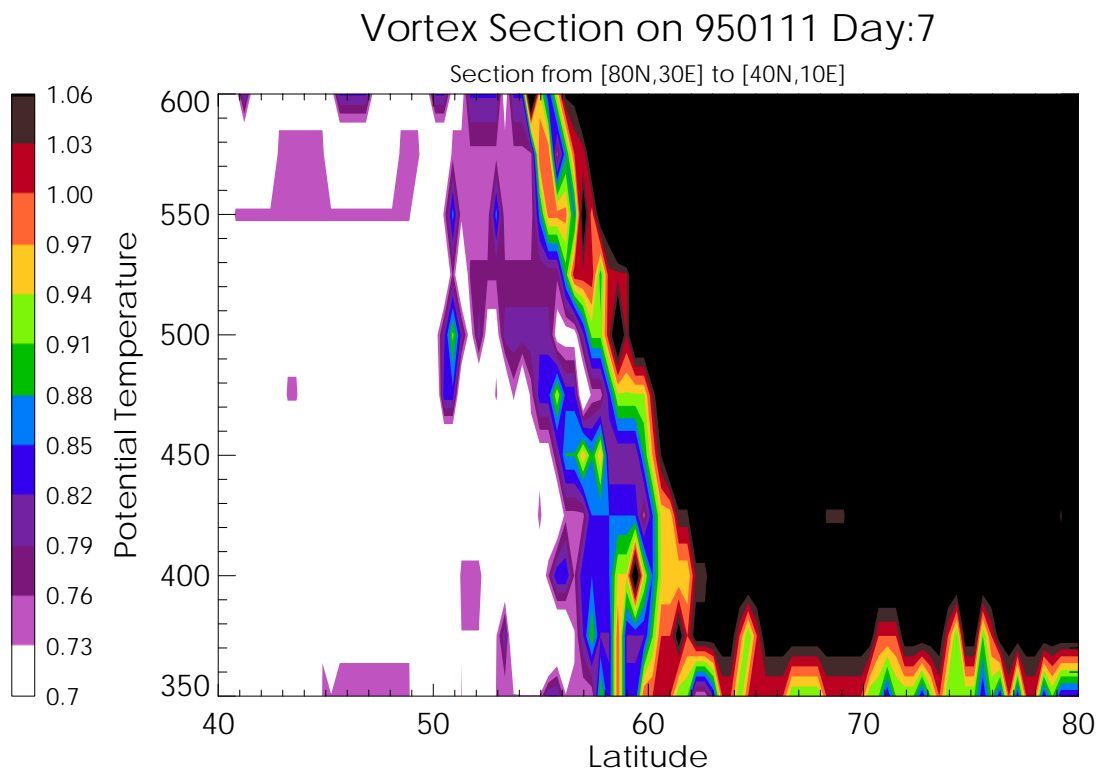




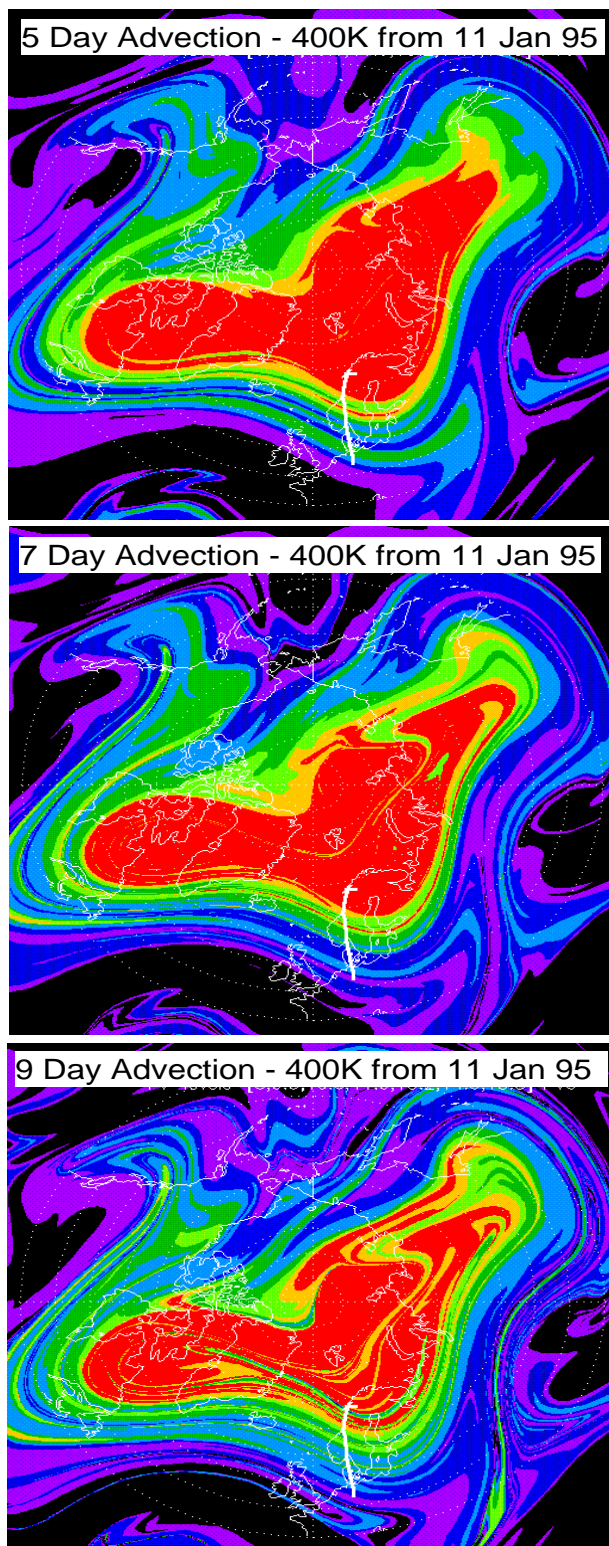
**Abbildung 1:** Aerosol und Ozon-Verteilung vom 11.01.1995 während eines Fluges von Manching entlang der Norwegischen Küste nach Kiruna. Die Wirbelgrenze ist mit der Höhe südwärts geneigt. Sie liegt bei 425K um 65° N und in 500K bei etwa 59°N. Die sehr hohen Rückstreuwerte im nördlichsten Teil des Fluges werden durch PSC verursacht. Überlagert sind PV-Konturen aus ECMWF-Analysen (2.5° x 2.5° Auflösung).

Die flache Schicht zwischen  $56^\circ$  N und  $61^\circ$  N bei etwa 365K ist in der simulierten PV-Verteilung nicht enthalten (Abb. 2). Dies kann auftreten, wenn lokale Inhomogenitäten advehiert werden, die in der zur Initialisierung verwendeten PV-Analyse wegen zu geringer vertikaler Auflösung nicht enthalten waren. Dies gilt allgemein für alle Strukturen, deren Ausdehnung am Initialisierungstag kleiner als die horizontale oder vertikale Maschenweite des Analyse-Gitters ist. Sie erreichen in der realen Atmosphäre nach mehrtägiger Advektion zwar größere Ausdehnungen, können aber durch die Contour-Advection-Simulation prinzipiell nicht wiedergegeben werden.

Es zeigt sich, daß im Laufe der Integration, wie es stellvertretend in der 9-Tage Advektion vom 11. Januar (unten in Abb. 3) erkennbar ist, immer feinere Strukturen auftauchen, deren Realität durch die Messungen nicht bestätigt wird. Das Auftreten neuer Strukturen kann zum einen vom unterschiedlichen Initialisierungsdatum herühren, liegt aber im Allgemeinen an der bekannten Tendenz dieser Modelle, aufgrund numerischer Ungenauigkeiten immer feinere Strukturen zu erzeugen. Da die Wahl der Konturlinien subjektiv und die Definition der Wirbelgrenze noch wenig abgesichert (evtl. auch zeitlich variabel) ist, ist auch die Interpretation geringer PV-Unterschiede fraglich. Die PV-Differenzen in der 9-Tage Simulation sind jedoch so groß, daß sie eigentlich nachweisbare Filamente beschreiben sollten.

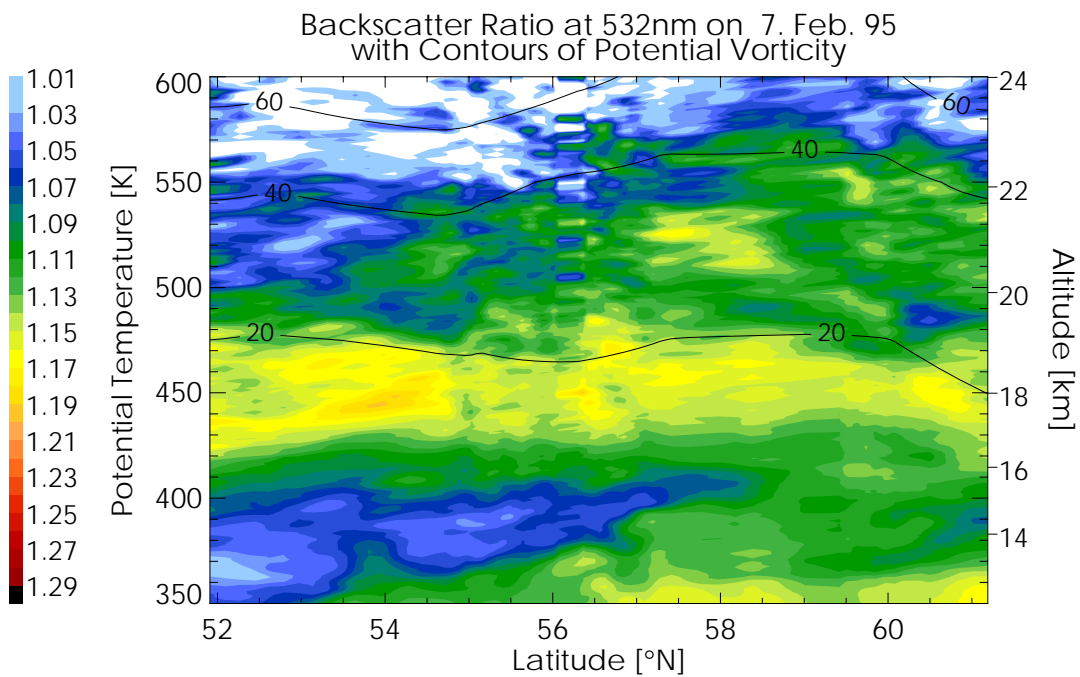
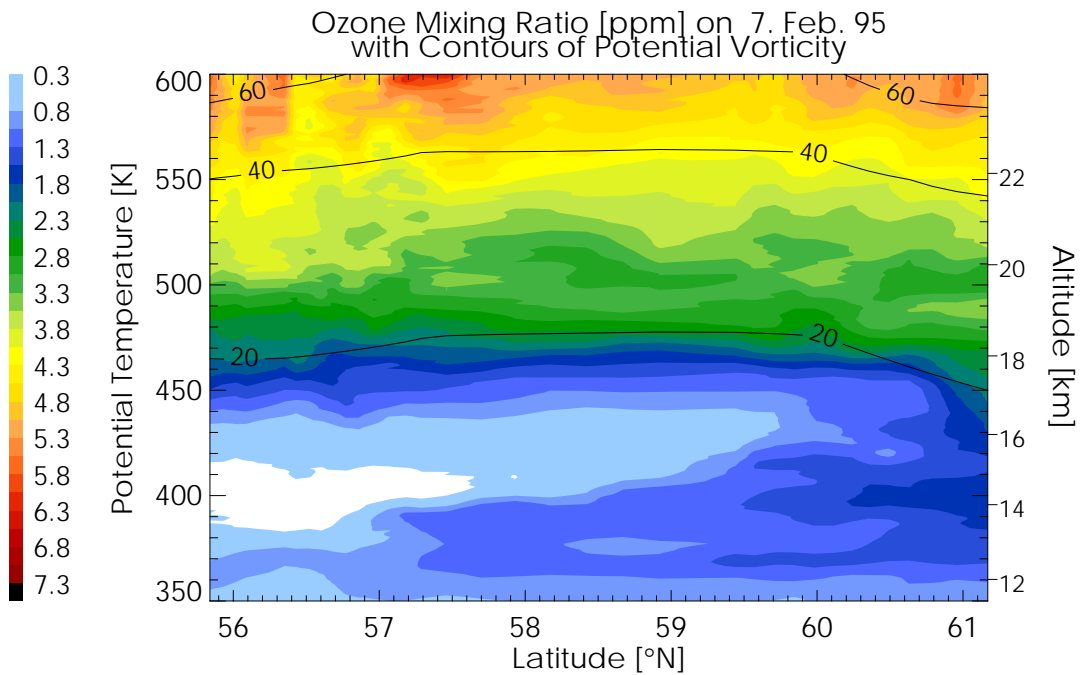


**Abbildung 2:** Vertikalschnitt durch den Rand des Polarwirbels am 11. Januar 1995 von  $80^\circ$ N,  $30^\circ$ E nach  $40^\circ$ N,  $10^\circ$ E. Zur Darstellung wurde die Höhenzunahme der Potentiellen Wirbelstärke durch Normierung der PV auf den Wert am Wirbelrand eliminiert. Die PV-Definition des Wirbelrandes in Abhängigkeit von der Höhe wurde aus früheren Lidar-Modell-Vergleichen abgeleitet [Dameris und Wirth 96].

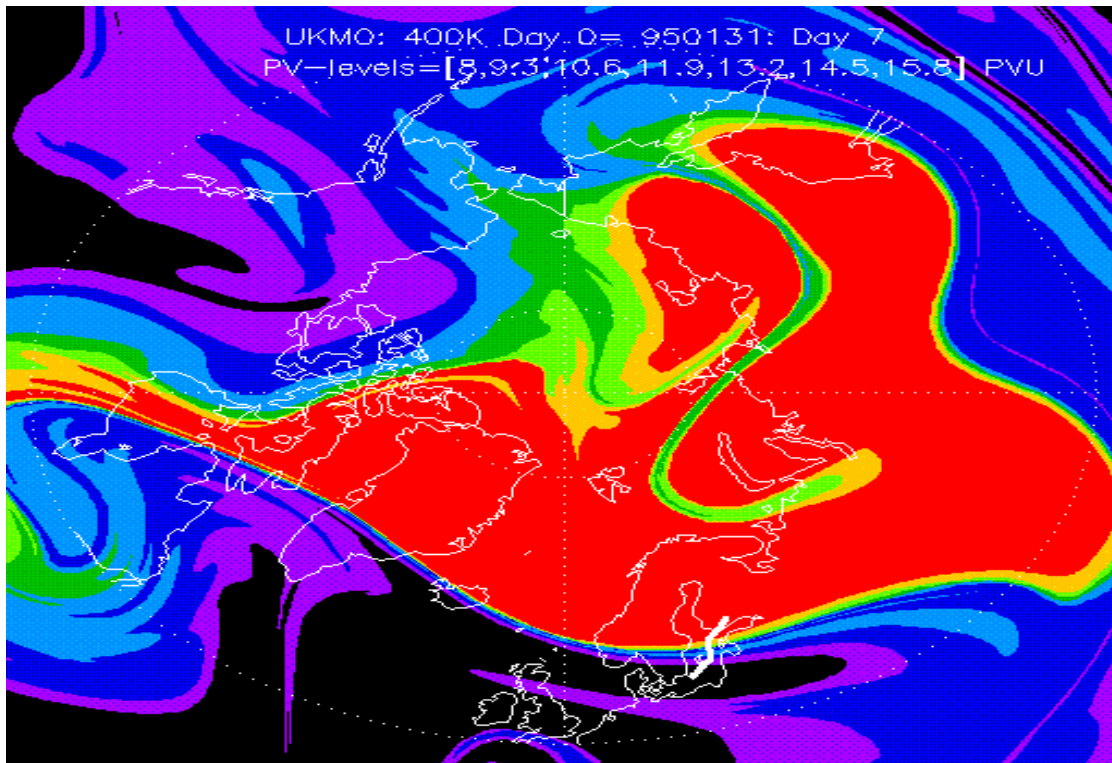


**Abbildung 3:** Polar-Stereographische Darstellung der PV in 400K vom 11. Jan 1995 nach 5- (oben), 7- und 9-tägiger Advektion mit Transall-Flugstrecke.

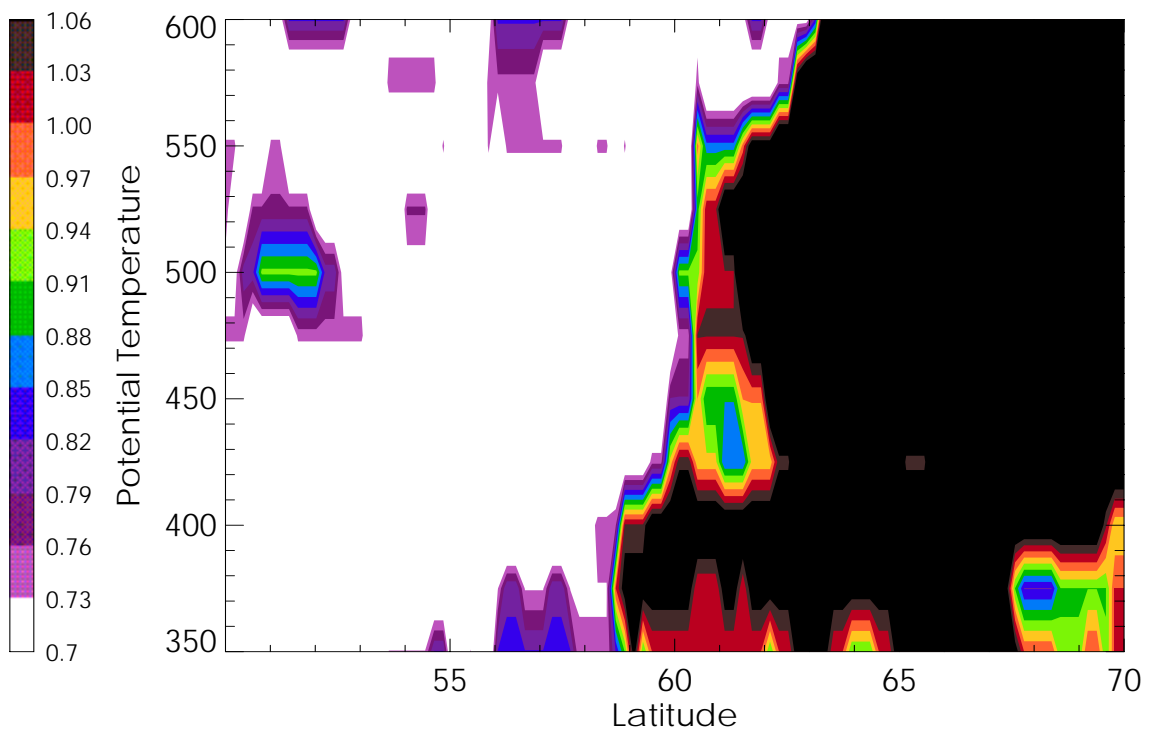
Am 7. Februar 1995 wurde ebenfalls ein Schnitt durch den Wirbelrand gemessen, der in dieser Messung besonders scharf ausgeprägt war. Sowohl das Ozon-Mischungsverhältnis als auch das Rückstreuverhältnis sind innerhalb einer keilförmigen Luftmasse gering, die sich südlich von etwa  $59^{\circ}$ - $60^{\circ}$ N und unterhalb von etwa 430K-450K erstreckt. Da sie in verschiedenen langen Zeitintervallen vorliegen, sind Ozon-Mischungsverhältnis und Rückstreuverhältnis über unterschiedliche Breitenintervalle dargestellt. Auf der südlichen Seite dieser Luftmassengrenze beträgt das Ozon-Mischungsverhältnis in 400K weniger als 0.3 ppm gegenüber 1.6 ppm bei  $61^{\circ}$ N. Die in Abbildung 5 oben dargestellte PV-Verteilung identifiziert die beobachtete Luftmassengrenze exakt mit dem Rand des Polarwirbels, an dem ein steiler PV-Gradient den Übergang zu einer Luftmasse aus niedrigen Breiten anzeigt. Der ungewöhnlich niedrige Ozonwert im südlichen Teil des Flugs ist demnach nicht auf polare Prozesse, etwa an PSC, zurückzuführen. Bemerkenswert sind auch die höheren Rückstreuverhältnisse in dem der Messung zugänglichen Randbereich des Wirbels gegenüber außerhalb. Ob dieses auf PSC zurückzuführen ist, deren Bildungstemperatur zuvor deutlich unterschritten worden war, ist den vorhandenen Daten nicht zu entnehmen. Wie im unteren Teil der Abbildung 5 gezeigt, beschränkt sich die Grenzverschärfung, die typisch für den Wirbelrand im Bereich brechender planetarer Wellen ist, etwa auf das 400K-Niveau, was mit der vertikalen Ausdehnung der beobachteten keilförmigen Luftmasse gut übereinstimmt.



**Abbildung 4:** Aerosol und Ozon-Verteilung vom 07.02.1995 während eines Fluges von Helsinki nach Manching mit überlagerten Konturen der ECMWF-PV. Da Ozondaten nur bis 56°N vorliegen, sind die Abszissen-Abschnitte unterschiedlich. Die Wirbelgrenze befindet sich in 425K bei 60°N. Darüber weicht sie nach Norden zurück und ist dort außerhalb des Meßgebiets.



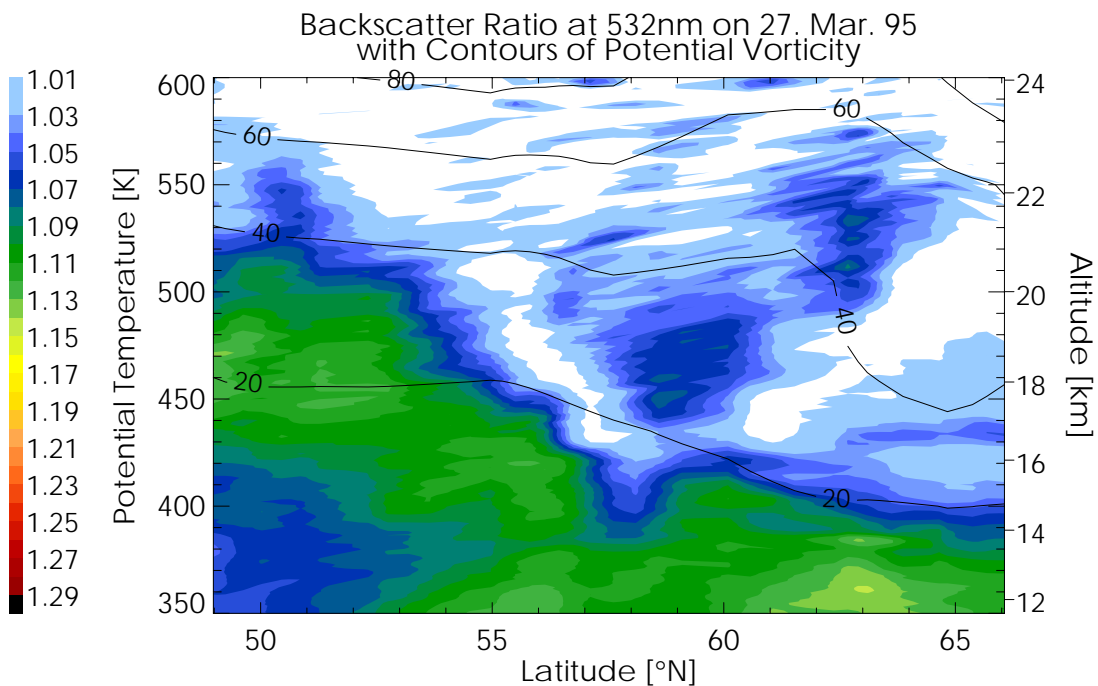
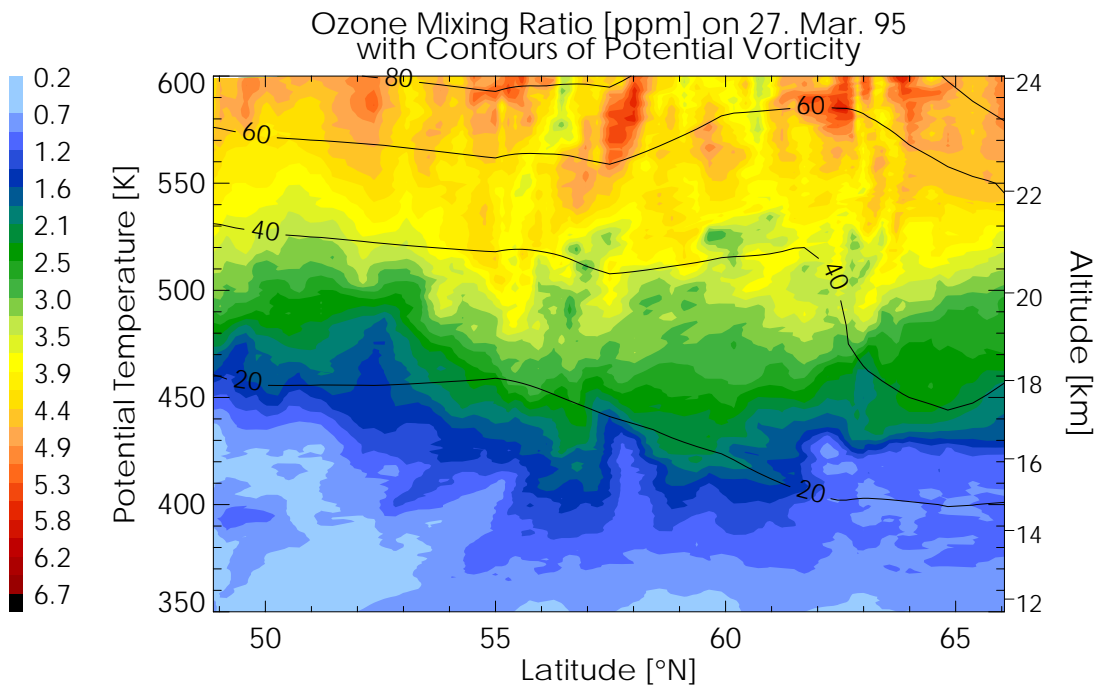
Vortex Section on 950207 Day:7



**Abbildung 5:** *OBEN: Polar-Stereographische Darstellung der PV in 400K vom 07.02.1995 mit Transall-Flugstrecke über der Ostsee. UNTEN: Vertikal-schnitt durch den Polwirbel von 70°N, 45°E nach 50°N, 10°E, wie in Abb. 2 dargestellt als auf den Wirbelrand normierte potentielle Wirbelstärke.*

Ende März/Anfang April 1995 setzte mit einer sehr starken dynamischen Störung des Polarwirbels der Übergang zur Sommerzirkulation, das „final warming“ ein. In diesem Zeitraum fanden mehrere Meßflüge der Transall statt, auf denen ausge dehnte Filamente beobachtet wurden. Besonders deutlich ist eines davon im Rückstreusignal vom 27. März in Abbildung 6 zu erkennen. Außer im Innern des Polarwirbels, der sich in der unteren Stratosphäre etwa nördlich von  $60^{\circ}\text{N}$  befand, treten extrem niedrige Rückstreuverhältnisse auch in dem besagten Filament zwischen  $[58^{\circ}\text{N}, 420\text{K}]$  und  $[55^{\circ}\text{N}, 520\text{K}]$  auf. Dazwischen befindet sich eine partikelreichere Luftmasse. Auch im Ozon-Mischungsverhältnis tritt die Signatur dieses Filaments auf. Wegen der horizontal homogenen Ozonverteilung oberhalb von  $450\text{K}$  und unterhalb von  $380\text{K}$  ist es jedoch nur im dazwischen liegenden Bereich deutlich erkennbar. Innerhalb des Wirbels, nördlich von  $62^{\circ}\text{N}$  befindet sich zwischen  $380\text{K}$  und  $430\text{K}$  eine Luftmasse, in der das Ozon-Mischungsverhältnis chemisch reduziert wurde und schon am 21. März, an diesem Tag jedoch etwa  $20\text{K}$  höher, gemessen wurde ([vgl. *Wirth und Renger* 96]). Im  $400\text{K}$ -Niveau direkt außerhalb des Wirbels ist das Ozon-Mischungsverhältnis etwa dreifach höher als innen, etwa  $4$  Breitengrade südlich, zwischen etwa  $57^{\circ}$  und  $58^{\circ}\text{N}$ , tritt wiederum ein Ozon-Mischungsverhältnis wie im Wirbelinnern auf, bevor es dann nach kurzem, erneutem Anstieg zu niederen Breiten hin abfällt. Anhand der Contour-Advection Rechnungen kann man diese partikel- und relativ ozonarme Luftmasse als ehemalige Wirbelluft identifizieren, die vom Rand des Polarwirbels abgeschält und meridional transportiert wurde.

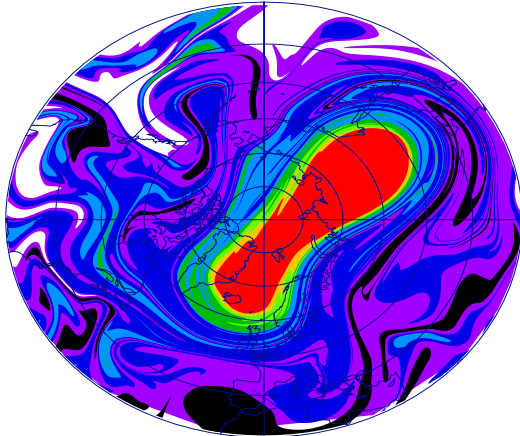
Die modellierte Entwicklung des Polarwirbels in diesem Zeitraum ist in Abb. 7 einerseits auf der isentropen  $450\text{K}$ -Fläche und in Abb. 8 analog zu Abb. 2 und 5 als vertikaler Schnitt durch den Polarwirbel, diesmal von  $[75^{\circ}\text{N}, 30^{\circ}\text{E}]$  bis  $[54^{\circ}\text{N}, 0^{\circ}]$  dargestellt. Die Modellanalyse der PV zeigt eine starke, durch eine brechende planetare Welle verursachte Intrusion von Luft mittlerer Breiten in den Polarwirbel, die sich ab dem 20. März 1995 entwickelt. Im weiteren Verlauf werden mehrere Filamente vom Rand des Polarwirbels abgeschält, von denen das oben beschriebene anhand des vertikalen Schnitts durch den Wirbel in Abbildung 8 verfolgt wird. Die zeitkorrigierte meridionale Abweichung der gerechneten von der gemessenen Position des Filaments beträgt  $0.4^{\circ}$  in südlicher Richtung in  $400\text{K}$  und  $0.5^{\circ}$  nördlich in  $525\text{K}$ . In der Zeit von  $1200$  UTC, für die die CA-Rechnung gilt, bis  $1600$  UTC, als das Flugzeug den Ort des Filaments bei  $58^{\circ}\text{N}$  erreichte, bewegte sich das Filament aufgrund der in seiner Nähe herrschenden meridionalen Komponente der Windgeschwindigkeit von etwa  $7\text{m/s}$  um etwa  $1^{\circ}$  in südlicher Richtung.



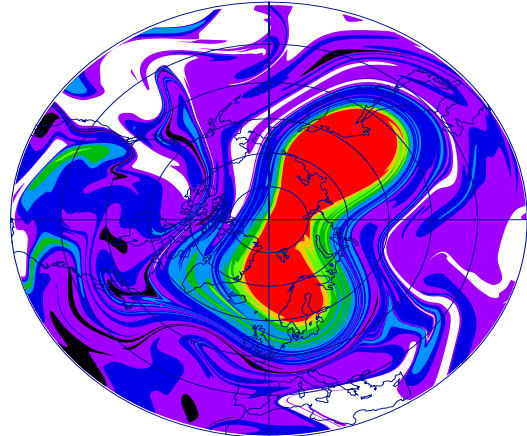
**Abbildung 6:** Aerosol und Ozon-Verteilung vom 27.03.1995 während eines Fluges von Kiruna entlang der Norwegischen Küste nach Manching mit Konturen der ECMWF-PV. Der Polarwirbel liegt in 425K nördlich von 60°N, in 550K von 65°N. Zwischen 58°N in 420K und etwa 55°N in 550K wurde ein Filament geschnitten, das bezüglich Ozon und Aerosol Wirbelcharakteristik aufweist.

# Wave Breaking Event in Late March 1995

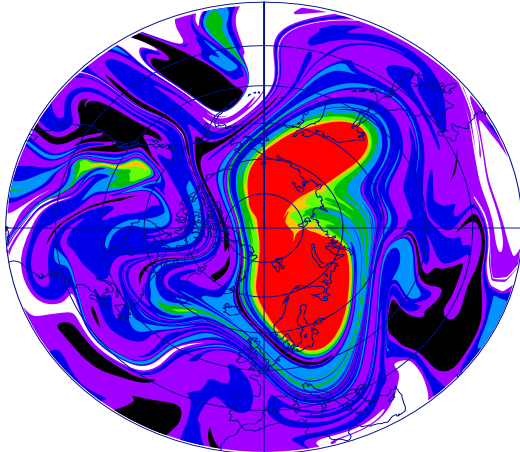
Potential Vorticity on 450K Date = 950318



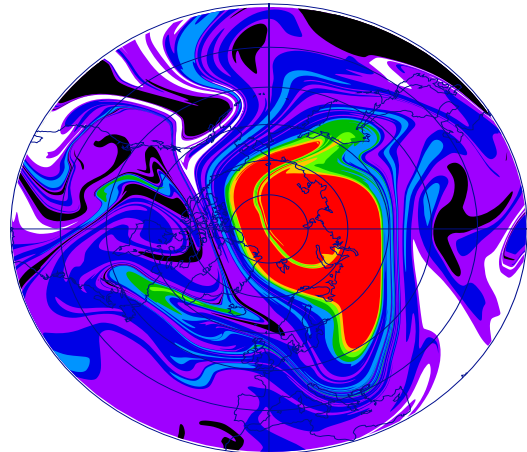
Potential Vorticity on 450K Date = 950320



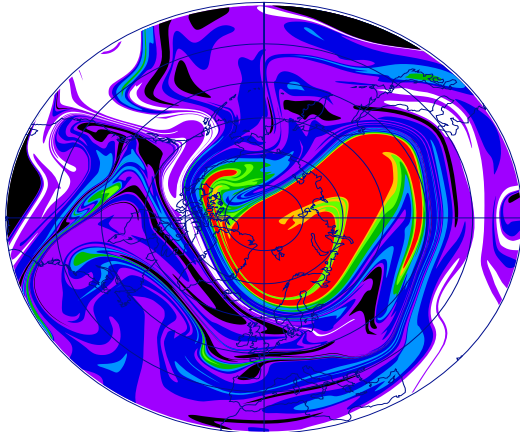
Potential Vorticity on 450K Date = 950322



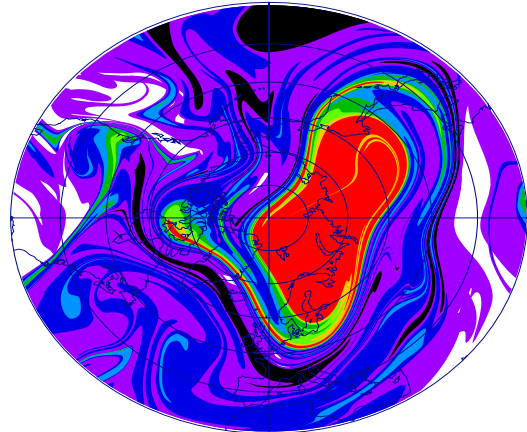
Potential Vorticity on 450K Date = 950324



Potential Vorticity on 450K Date = 950326

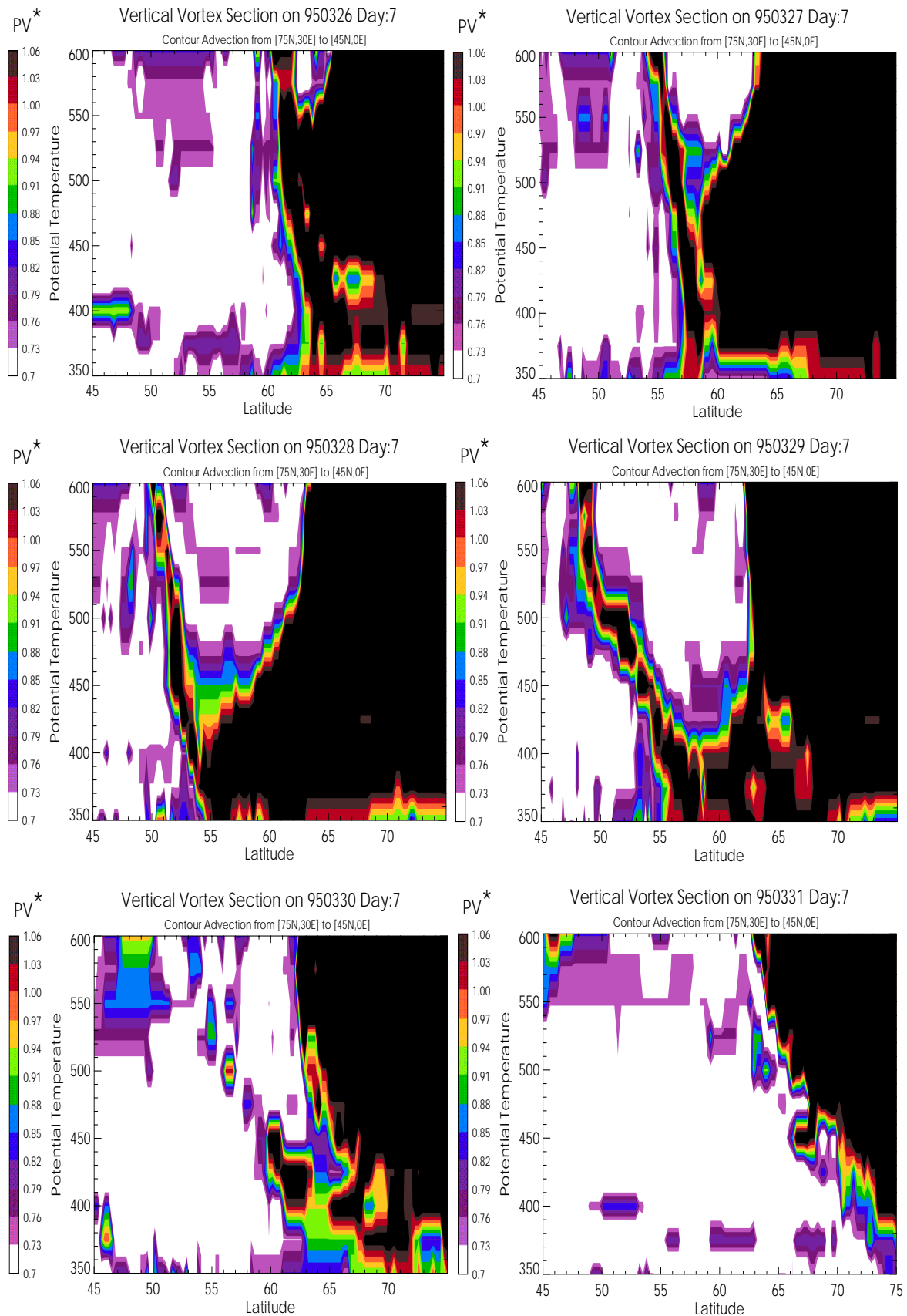


Potential Vorticity on 450K Date = 950328



**Abbildung 7:** „Wave-breaking“ am Polarwirbel Ende März 1995 dargestellt an der Entwicklung der PV in Polar-Stereographischer Darstellung des 450K-Niveaus. Das PV-Feld ist in 2-tägigen Abständen vom 18.03 - 28.03.95 dargestellt.





**Abbildung 8:** Erzeugung eines Filaments am Rande des Polarwirbels durch eine brechende planetare Welle, dargestellt an der auf den Wirbelrand normierten PV analog zu Abb. 2. Der Vertikalschnitt verläuft durch den Polwirbel von 75°N, 30°E nach 45°N, 0°.

Anhand der gegebenen Beispiele sollten die Ergebnisse der Lidarmessungen und die Contour-Advektions-Rechnungen veranschaulicht werden. Die ausgewählten Messungen stammen aus den drei Perioden des untersuchten Winters, in denen der Polarwirbel durch verschärfte Aktivität der zirkumpolaren planetaren Welle dynamisch gestört war und daher im Bereich seines äußeren Randes vermehrt Filamente oder krasse Frontalzonen aufwies. Die Quantifizierung der Genauigkeit, mit der die Contour-Advection Resultate mit den experimentellen Ergebnissen übereinstimmen, inklusive einer bewertenden Diskussion, erfolgt im nächsten Abschnitt.

## **4 Diskussion**

### ***4.1 Simulation-Messung Vergleich***

Eine rein statistische Auswertung der vorliegenden Daten im Sinne von Korrelationen der numerischen und experimentellen Ergebnisse allein ist nicht geeignet, ein befriedigendes Maß für die Genauigkeit der Contour-Advection Simulationen zu liefern. Dies liegt hauptsächlich daran, daß die typischen Flugstreckenlängen und die typischen Skalen der die Filamente erzeugenden Prozesse im Randbereich der Polwirbels mit meridional einigen 100 - 1000 km in der gleichen Größenordnung liegen, also pro Flug nur sehr wenige Filamente geschnitten wurden. Andererseits wurde während der Meßkampagnen Ozon durch chemische Prozesse und das Rückstreuverhältnis durch PSC Bildung, z.B. durch adiabatische Prozesse in orographischen Schwerewellen, beeinflußt. Dieses muß bei der Einordnung der Filamente als Wirbel- oder Nicht-Wirbelluftmasse im Einzelfall berücksichtigt werden.

Da die Anzahl der Filamente pro Flug und  $\theta$ -Niveau gering ist, wurde also die Prognosegenauigkeit der PV-Advektionsrechnungen als meridionale Abweichung zu den Messungen ausgedrückt. Meridional deswegen, weil die Wirbelgrenze im allgemeinen zonal verläuft und während der Kampagnen entsprechend der vorliegenden PV-Prognose ein Flugkurs senkrecht zum Wirbelrand gewählt wurde. Die Meßdaten sind daher als Funktion der nördlichen Breite am besten aufgelöst. Die ermittelten Abweichungen sind in der folgenden Tabelle 1 zusammengefaßt.

**Tabelle 1:** Meridionale Verschiebung der simulierten bezüglich der gemessenen Strukturen. Angegeben sind Breitengrade, positive Werte bedeuten Nordverschiebung der Simulation relativ zur Messung. Ist die Struktur nur im Ozon, nur im Aerosol oder in beiden Größen gemessen worden, ist die Verschiebung entsprechend jeweils dünn, kursiv oder fett gedruckt. Die Fehlergrenzen beziehen sich auf die geschätzte Unsicherheit bei der Bestimmung der Position der Strukturen. Nicht reproduzierte Strukturen sind durch " \*\*\* " angedeutet, Vergleiche, die sich auf die Wirbelgrenze beziehen sind unterstrichen.

	17.12.	11.1.	7.2.	21.3.	27.3.	4.4.	5.4.	8.4.
350K							1.2±1.2	
375K	-1.1±0.6 0.4±0.6	***	<u>0±1.5</u>			0.3±0.3	0±0.3 1±0.3	
400K		-0.1±0.2 0.6±0.3 <u>0±0.6</u>	<u>0±1</u>		-0.3±0.2 <u>-0.4±0.6</u>	0.2±0.2 -0.5±0.9 ***		
425K		<u>0±1</u> -0.2±0.4		<u>0.6±0.4</u>	-0.3±0.3 <u>-1±0.3</u>	0.6±0.6 0.8±0.2		<u>-0.7±0.5</u> -0.5±1
450K		<u>0.5±0.6</u> -0.3±0.3		-1±0.6	-0.1±0.3 <u>-0.5±0.3</u>	<u>-0.3±0.6</u> 0.4±0.2		<u>-0.8±1</u>
475K		0.4±0.6		<u>0±1</u>	0.5±0.6 <u>-0.6±0.5</u>	<u>0±0.6</u> -0.2±0.3		<u>-0.7±0.5</u>
500K				<u>-0.3±0.3</u>	0.6±0.6 <u>-0.9±0.5</u>	<u>0.3±0.4</u>		<u>-1.1±0.5</u>
525K		<u>0±0.6</u>			0.5±1 <u>-0.7±0.5</u>			<u>-0.3±0.5</u>
550K		<u>0±0.6</u>			<u>0.4±0.3</u>			<u>-0.3±1</u>

Es wurden sowohl die Position der Filamente als auch der Wirbelgrenze ausgewertet. Tabelle 1 und 2 zeigen, daß die Contour-Advection Simulationen die meisten beobachteten Strukturen (Filamente bzw. Wirbelgrenze) mit einer Genauigkeit von deutlich unter einem Breitengrad wiedergeben. Die Genauigkeit der Contour Advection Analyse hängt weder eindeutig von der Jahreszeit noch von der Höhe ab.

**Tabelle 2:** Häufigkeitsverteilung der meridionalen Abweichung zwischen simulierten und gemessenen Strukturen.

Abweichung in °	Anzahl	Prozentualer Anteil
≤ 0.3	23	42 %
0.3 - 0.6	14	26 %
0.6 - 0.9	6	11 %
0.9 - 1.2	6	11 %
≥1.2	3	6 %
Nicht reproduziert	2	4 %

Tabelle 2 zeigt, daß etwa 70% der Strukturen genauer als 0.6° Breite wiedergegeben werden, was etwa der in numerischen Studien ermittelten bestenfalls erreichbaren Genauigkeit entspricht ([Methven und Hoskins 98]). In nur 10% der Fälle treten Abweichungen von über einem Grad auf, die jedoch häufig relativ weite Fehlergrenzen aufweisen, da die Gradienten am Rande der Strukturen schwach sind. In zwei Fällen konnten nach obiger Definition als Filamente identifizierte Strukturen nicht durch die Contour-Advektion Rechnungen reproduziert werden. Dies bedeutet allerdings nicht eindeutig, daß die Simulationen unvollständig sind, da auch Luftmassen des gleichen Typs (von innerhalb oder außerhalb des Wirbels) sich bezüglich ihres Ozon- oder Aerosolgehalts unterscheiden können, aber von den Contour-Advection Simulationen nicht weiter unterschieden werden.

Erheblichen Einfluß auf das Resultat der Contour-Advection Rechnungen hat das Datum, an dem die Simulation initialisiert wird. Nach einer Einlaufzeit von etwa 3-4 Tagen findet etwa vom 5. bis zum 7. Tag die realistischste Entwicklung der PV-Verteilung statt, bevor danach immer mehr kleinskaligere Strukturen auftauchen, die nicht gemessen wurden. Näher als etwa 0.3° dicht nebeneinander liegende Strukturen können nicht zugeordnet werden, da dies über die Genauigkeit der Contour-Advection Rechnungen hinausgeht. Dies kann durch eine „Konturen-Chirurgie“-Prozedur, die Manipulationen an nach gewissen Kriterien als unreal erachteten Konturverläufen vornimmt, verringert werden. Dabei kommt es jedoch wiederum sehr auf die Wahl der dieser Prozedur zugrunde liegenden Schwellenparameter an, die im Einzelfall unterschiedlich sind.

Außerdem können sich nach einigen Tagen der Advektion diabatische Transporte durch Isentropen verstärkt als vertikale Versetzung bemerkbar machen. Ein solcher Fall tritt am 27. März auf und ist aufgrund einer im Wirbel sowohl am 21. als auch am 27. März gemessenen charakteristischen Luftmasse nachweisbar, die im Verlauf

dieser 6 Tage um etwa 20K absank. Dieses Absinken führte dazu, daß das am 27. März auffällige vertikal geneigte Filament während der isentropen Advektion über 7 Tage um etwa 20K zu hoch und aufgrund seiner Neigung meridional entsprechend versetzt simuliert wurde. Da Subsidenz im Wirbel aufgrund der Abkühlung generell auftritt, sind solche scheinbaren horizontalen Verschiebungen vertikal ausgedehnter geneigten Filamenten stets zu erwarten.

**Tabelle 3:** Meridionale Windgeschwindigkeit (*v*-Wind) im Meßgebiet in den für die untersuchten Strukturen repräsentativen Höhenniveaus. Rechte Spalte: Die sich aus der *v*-Windkomponente ergebende zeitbedingte meridionale Verschiebung der gemessenen Strukturen. Am 27. März war das Windfeld sehr inhomogen, WR bezeichnet die Verhältnisse am Wirbelrand.

Datum	Höhe ( $\theta$ )	Meridional-Wind (+ $\rightarrow$ N)	Meridionale Versetzung
17.12.94	375K	-0.05°/h	0.05° – 0.2°
11.01.95	450K	-0.04°/h	-0.1° – 0.07°
07.02.95	400K	-0.3°/h	-0.08° – 0.05°
21.03.95	425K	-0.06°/h	-0.02° – 0.3°
27.03.95	425K	-0.25°/h	0.5° – 1.7°
27.03.95	500K	-0.04(WR)/-0.25°/h	0.08°–0.26°(WR)/0.5°–1.7°
04.04.95	450K	-0.04 °/h	0.04° – 0.25°
05.04.95	375K	+0.04 °/h	$\approx$ -0.2°
08.04.95	450K	-0.12 °/h	-1.2° – -0.4°

Die Zeitverschiebung zwischen Simulation und Messung beträgt am Ort der untersuchten Filamente (bzw. der Wirbelgrenze) z.T. einige Stunden und führt besonders in Perioden mit erhöhter Wellenaktivität und damit höherer meridionaler Windgeschwindigkeiten zu merklichen Versetzungen. In Tabelle 3 sind die meridionalen Verschiebungen der Contour-Advection Analyse von 1200 UTC relativ zur Zeitperiode der Messung angegeben. Die ausgewählten Höhen sind jeweils repräsentativ für den Wind im Höhenbereich der verglichenen Strukturen. Da die beobachteten Strukturen meist etwa in der Mitte des Meßintervalls auftreten, sind die resultierenden Verschiebungen in der Mehrheit der Fälle vernachlässigbar gering. Sie spielen nur am 27. März und am 8. April eine so wesentliche Rolle, daß sie zu erheblichen Korrekturen führen, und die Differenzen zwischen Simulation und Messung um etwa

einen Breitengrad reduzieren. Diese Korrekturen sind in den Tabellen 1 und 2 bereits enthalten.

## **4.2 Luftmassenaustausch über den Rand des Polarwirbels der nördlichen Hemisphäre**

Basierend auf der in den meisten Fällen erfolgreichen Validierung der Contour-Advection Simulationen durch die gemessenen Aerosol- und Ozon-Verteilungen bieten die CA-Rechnungen die Gelegenheit, den zeitlichen Verlauf der von verschiedenen Konturen eingeschlossenen Fläche zu berechnen. Durch die Wahl derjenigen Konturen, die der Wirbelrand-Definition entsprechen, erhält man dann Informationen über die Variabilität der Wirbelfläche und damit in erster Näherung auch seines Volumens im Verlauf des Winters. Da das Modell isentrop rechnet, können mit dieser Methode keine Vertikalverlagerungen innerhalb des Wirbelvolumens festgestellt werden. Von der Variabilität der Wirbelfläche läßt sich wiederum direkt auf den Luftmassentransport über den Wirbelrand schließen. Dieser wurde in 450K durch die 24PVU-Konturlinie und in 600K durch die 96PVU-Konturlinie definiert. Die Simulationen zeigen, daß die vom Wirbel abgeschälten Luftmassen oft erst noch relativ lange in der unmittelbaren Nähe des Wirbels verbleiben, bevor die meridionale Windkomponente in der nachfolgenden Phase des mäandrierenden Polarjets zyklonal voranschreitend abrupt ansteigt.

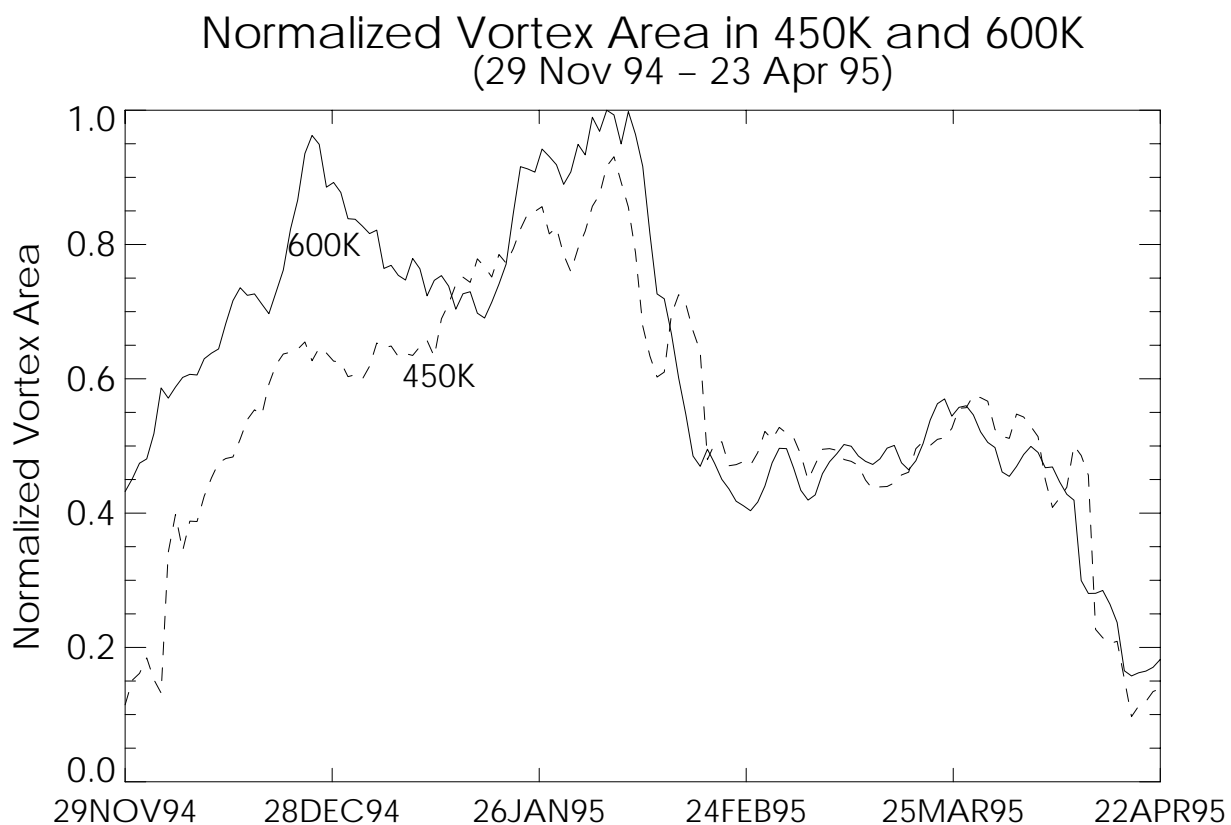
Es zeigt sich am zeitlichen Verlauf der Wirbelfläche, der in Abb. 9 für die Niveaus 450K und 600K dargestellt ist, daß es im Winter 1994/95 zwei Perioden gab, in denen der Wirbel stark erodiert wurde - Ende Dezember 1994 und Anfang Februar 1995. Die dritte starke Erosion des Wirbels Ende März 1995 leitete den Zusammenbruch des Wirbels und den Übergang zur Sommerzirkulation ein. Das Ereignis im Februar wurde nach den Analysen des Meteorologischen Instituts der FU-Berlin klimatisch als sog. „starke kleine Stratosphärenerwärmung“ klassifiziert, in deren Verlauf sich die zyklonale Strömung zwar nicht umdrehte, ihr Schwerpunkt aber weit vom Nordpol weg nach Sibirien verlagert wurde [Naujokat und Pawson 96].

Die beobachteten Störungen des Polarwirbels hängen alle mit dem sog. Brechen planetarer (Rossby-) Wellen zusammen, die ausgedehnte Filamente vom Rand des Wirbels abschälen und in mittlere Breiten transportieren. Der Rückgang der Wirbelfläche in Abb. 9 tritt erst dann auf, wenn die entsprechende Konturlinie derart gefaltet und auseinander gezerrt ist, daß sie nach vorbestimmten Kriterien vom Wirbel abgeschnitten wird. Die eigentliche Störung des Wirbels beginnt daher jeweils schon früher als die in Abb. 9 dargestellte Reduktion der Fläche.

Zu Beginn des Winters entwickelte sich der Polarwirbel relativ schnell. Dabei wurden immer größere Gebiete vom Polarjet umschlossen, der zu diesem Zeitpunkt im wesentlichen zonal verlief und meridional nur relativ gering mäandrierte - d.h. die langen planetaren Wellen waren noch schwach. Ende Dezember und Anfang Februar kam es durch barokline Advektionsprozesse zur Verstärkung der Wellenamplitude. Da diese aufgrund der Drehimpulserhaltung der beteiligten Luftmassen stets unsymmetrisch bezüglich der Meridiane ist, führte ihre Verstärkung schließlich zum Brechen der Welle (vgl. Abb. 7). Dabei überholt der nordwärts gerichtete Ast des mäandrierenden Polarjets den südwärts gerichteten Ast in zentraler Richtung, was zur

Faltung des Jets und aufgrund der Tendenz zur Relinearisierung der Welle zur Intrusion der nordwärts gerichteten Luftmasse in den Polarwirbel führt. Gleichzeitig wird dabei die nun durch den eingedrungenen Jet vom Wirbel abgedrängte Luftmasse durch die folgende Phase des Polarjets vom Wirbel abgeschält und als Filament während der südwärts gerichteten Phase des Jets beschleunigt meridional abtransportiert.

Die Erosion war im höhergelegenen Teil des Wirbels (600K) jeweils stärker als im unteren Teil (450K). Trotz der quantitativen Unsicherheiten dieser Methode läßt sich abschätzen, daß durch den soeben beschriebenen, an Abb. 7 anschaulich nachvollziehbaren Prozeß innerhalb von 1-2 Wochen z.B. in 600K etwa 20% (Ende Dezember / Anfang Januar) bzw. 40 - 50% (Anfang Februar) der vorher im Wirbel eingeschlossenen Luftmassen isentrop in mittlere Breiten transportiert wurden. Obwohl also der Polarwirbel eine in allgemeinen recht strikt abgeschlossene Luftmasse bildet, kann sein Rand sporadisch kurzzeitig aufgebrochen und so ein erheblicher Ausfluß von Luftmassen eingeleitet werden.



**Abbildung 9:** Variabilität der Ausdehnung des Polarwirbels in 450K und 600K, normiert auf den Maximalwert in 600K. Als Wirbelfläche gilt die von den Konturlinien mit 24PVU (450K) bzw. 96PVU (600K) eingeschlossene Fläche. Starke Einbrüche treten jeweils in Perioden brechender planetarer Wellen auf und zeigen Luftmassentransport über den Rand des sonst isolierten Polarwirbels an.

### **4.3 Konsequenzen für die Ozon-Säulendichte in mittleren Breiten**

In Publikationen der letzten Jahre wird die Reduktion der Ozon-Säulendichten, die in mittleren Breiten der nördlichen Hemisphäre beobachtet wird, auf den Transport Ozon-reduzierter Luftmassen aus dem Polarwirbel zurückgeführt. Da im klimatologischen Mittel in der Arktis etwa zwei bis drei Stratosphärenenerwärmungen pro Winter auftreten, würden entsprechend der für den Winter 1994/95 abgeschätzten Ausflusssraten im Verlauf eines Winters etwa die Hälfte der Wirbelmasse in der unteren Stratosphäre mit der restlichen Hemisphäre ausgetauscht. Allerdings sind diese Ausflusssraten nach [Norton und Chipperfield 95] von Jahr zu Jahr sehr variabel und im Mittel geringer als hier abgeschätzt. Durch den Austausch werden die Luftmassen einerseits gemischt, andererseits kann die polare Luftmasse chemisch konditioniert sein, d.h. die Voraussetzung für katalytischen Ozonabbau in mittleren Breiten bieten.

Ob eine direkte Verdünnung der Ozon-Säulendichte in mittleren Breiten stattfindet, hängt von den Bedingungen im Wirbel, letztendlich von der Differenz der Ozon-Mischungsverhältnisse innerhalb und außerhalb des Polarwirbels ab. Häufige Störungen des Wirbels haben zwar relativ hohe Austauschraten mit der Resthemisphäre, aber auch erhöhte Temperaturen und entsprechend geringere heterogene Konditionierung an PSC und damit geringeres Potential zum Ozonabbau zur Folge. Im untersuchten Winter etwa waren die Ozon-Mischungsverhältnisse im Wirbel trotz länger dauernden chemischen Ozonabbaus bis auf einen mehrere Grade breiten Ring um den Wirbel nicht wirklich geringer als weiter außerhalb. Auch wenn in den vergangenen Jahren die Ozonwerte im Wirbel und damit der Ozongehalt der aus dem Wirbel ausfließenden Luft rückläufig sind, ist die beobachtete Ozonabnahme durch reine Verdünnung kaum zu erklären, da das Wirbelvolumen im Vergleich mit mittleren Breiten recht gering ist.

Die aus dem Wirbel ausgeflossenen Luftmassen können jedoch chemisch konditioniert sein, also Halogenverbindungen enthalten, die photolytisch zu Cl- oder Br-Radikalen gespalten (aktiviert) werden können. Findet also eine Konditionierung im Wirbel statt, kann nach Transport und Mischung der katalytische Ozonabbau auch außerhalb des Polarwirbels ablaufen. Die Konditionierung der Luftmassen, die Umwandlung inerte Halogen-Reservoirgase in photo-instabile Vorläufer der Cl- und Br-Radikale, findet im Wirbel durch heterogene Reaktionen an PSC statt. Welches Ozon-Abbaupotential die aus dem Wirbel stammenden Luftmassen besitzen, hängt damit letztendlich von den Bedingungen im Wirbel ab. Trotzdem die Fläche des Polarwirbels, wenn dieser sich etwa nördlich von 60-70°N erstreckt, etwa um eine Größenordnung geringer ist als die der restlichen Hemisphäre, können großskalige Reduktionen der Ozon-Säulendichte mittlerer Breiten aufgrund der abgeschätzten Austauschraten, der Geschwindigkeit und Effektivität der katalytischen Reaktionszyklen nicht ausgeschlossen werden.

Daneben können vertikal ausgedehntere ozonarme Filamente zu vorübergehenden starken Rückgängen der Ozon-Säulendichte führen, ähnlich wie es aus anderen Gründen bei Ozon Minilöchern beobachtet wird. Effiziente Mischungsprozesse, wie sie in der sog. „Surf Zone“ außerhalb des Wirbelrandes auftreten, bewirken jedoch, daß solche lokalen Einbrüche der Ozonsäule nur relativ kurz andauern.

Das Brechen planetarer Wellen ist ein für turbulente Strömungen typischer „chaotischer“ Prozeß, der jedoch „offline“ (unter Verwendung abgespeicherter meteorologischer Analysen) wie gezeigt recht zuverlässig reproduzierbar und entsprechend mit



Contour Advection auch über *kurze* Zeiträume prognostizierbar ist. Er entzieht sich jedoch einer längerfristigen numerischen Vorhersage völlig, zumal dann auch die chemischen Randbedingungen sehr schwierig zu erfassen sind. Die Möglichkeit einer Prognose der durch diesen Prozeß bewirkten Transportraten in mittleren Breiten für eine entferntere Zeitperiode ist unrealistisch.

## 5 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die während der SESAME-Kampagnen im Winter 1994/95 gemessenen Lidar-Schnitte von Ozon und Aerosol-Rückstreuverhältnis mit Contour-Advection Transport-Simulationen der Potentiellen Wirbelstärke (PV) verglichen. Es wurde gezeigt, daß bis auf wenige Ausnahmen alle gemessenen Filamente durch Contour-Advection reproduziert werden. Ihre Position und die der oft deutlich erkennbaren Wirbelgrenze werden durch das Transportmodell im allgemeinen genauer als auf  $0.5^\circ$  Breite wiedergegeben, was der in numerischen Studien ermittelten Genauigkeitsgrenze entspricht. Abweichungen resultieren im wesentlichen aus Subsidenz und der Ungenauigkeit der meteorologischen Analysen. Als kritischster Parameter der Simulationen stellte sich das Initialisierungsdatum heraus. Die beste Übereinstimmung der simulierten mit den gemessenen Filamenten tritt bei einer Advektionsdauer zwischen 5 und 7 Tagen auf. Der Mechanismus zur Erzeugung der Filamente ist, wie auch von anderen Autoren berichtet, das Brechen planetarer Wellen. Demzufolge ist der Transport über den Wirbelrand höchst diskontinuierlich und nichtlinear. Im untersuchten Winter traten zwei „wave breaking“ Ereignisse auf, die zu einer vorübergehenden Reduktion der Wirbelfläche in der unteren Stratosphäre um wenige Prozent bis zu 50 Prozent zwischen 450K und 600K Höhe führten. Ein Beitrag zur Reduktion der Ozon-Säulendichten in mittleren Breiten ist im Hinblick auf die Effektivität katalytischer Prozesse und die abgeschätzten Austauschraten nahelegend, ist jedoch sehr von den meteorologischen Umstände im Polarwirbel abhängig. Daneben können vertikal ausgedehntere Filamente zu auffälligen lokalen Ereignissen führen.

## 6 Vorträge/Publicationen

Flentje, H., M. Wirth und W. Renger, Airborne LIDAR Measurements of Ozone and Aerosol in the Arctic Stratosphere in Winter 94/95, Centre for Global Atmospheric Modelling, University of Reading, UK.

Flentje, H., M. Wirth und W. Renger, Comparison of Airborne Lidar Measurements with High Resolution Tracer Transport Models, Vortrag in Session „Oceans and Atmospheres“ auf der 24. EGS-Tagung, Nizza, Frankreich, 1998.

Flentje, H., M. Wirth und W. Renger, Comparison of Airborne Lidar Measurements with High Resolution Tracer Transport Models, Proceedings of the 19<sup>th</sup> international Laser-Radar Conference, Annapolis, USA, 1998.

Flentje, H., M. Wirth und W. Renger und W.A. Lahoz, Comparison of Airborne Lidar Measurements with Contour Advection Simulations, prepared to be published in JGR, 1999.

## 7 Literatur

Dameris, M., M. Wirth, W. Renger und V. Grewe, Definition of the Polar Vortex Edge by Lidar Data of the Stratospheric Aerosol: A Comparison with Values of Potential Vorticity, *Contr. Phys. Atmosphere*, 68, 2, 113 ff., 1995.

Dritschel, D., On the Stabilisation of a Two Dimensional Vortex Strip by Adverse Shear, *J.Fluid.Mech.*, 206, 193 ff., 1989.

Methven, J. und B. Hoskins, On the Advection of High Resolution Tracers by Low Resolution Winds, submitted for publication in *Jorn. Atm. Sci*, 1998.

Naujokat, B. und S. Pawson, The cold stratospheric winters 1994/1995 and 1995/1996, *GRL*, 23, 25, 3703-3706, 1996.

Norton, W.A. und M.P. Chipperfield, Quantification of the Transport of Chemically Activated Air from the Northern Hemisphere Polar Vortex, *JGR*, 100, D12, 25817ff., 1995.

Stolarski, R.S, R. Bojkov, L. Bishop, C. Zerefos, J. Staehelin und J. Zawodny, Measured Trends in Stratospheric Ozone, *Science*, 256, 343 ff., 1992.

Swinbank, R. und A. O'Neill, A Stratosphere-Troposphere Data Assimilation System, *Mon. Weather Rev.*, 122, 686-702, 1994.

Wirth, M und W. Renger, Evidence of Large Scale Ozone Depletion within the Arctic Polar Vortex 94/95 Based on Airborne Lidar Measurements, *GRL*, 23, 8, 813 ff., 1996.

## **Ozonforschungsprogramm**

Schlußbericht des Max-Planck-Instituts für Chemie, Mainz  
(Auftragnehmer des Instituts für Umweltphysik, Universität Heidelberg)  
zum Forschungsvorhaben

### **Erweiterte Interpretation der mit den Transallfernerkundungsgeräten (LIDAR, MIPAS, DOAS) gewonnenen Datensätzen.**

gefördert durch

das Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft,  
Forschung und Technologie (BMBF)

Förderkennzeichen 01LO9531/0

Laufzeit 01/96-12/98

Projektleiter: Dr. D. Perner

September 1999

---

Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz  
Joh.-Joachim-Becher Weg 27  
69120 Heidelberg

---

# 1.) Einleitung

Mit Beginn der Industrialisierung im 19. Jahrhundert, vor allem aber seit Anfang dieses Jahrhunderts, hat der Mensch durch seine wirtschaftlichen und technischen Aktivitäten zusätzlich zu den Emissionen aus natürlichen Quellen große Mengen an Gasen und Aerosolen in die Erdatmosphäre eingetragen. Diese Belastung hat inzwischen ein globales Ausmaß angenommen und Veränderungen, deren Folgen ganze Kontinente betreffen, sind nicht mehr auszuschließen.

Eine der wichtigsten Veränderungen ist der Abbau der stratosphärischen Ozonschicht. Als Ursache dieses Ozonabbaus konnten bereits in den frühen 70er Jahren anthropogen emittierte Stickstoff- und Halogenverbindungen verantwortlich gemacht werden. Diese Substanzen greifen in die natürlichen Stoffkreisläufe anderer Spurengase ein und beeinflussen auch jene Substanzen, die durch photochemische Reaktionen gebildet oder zerstört werden. Zu diesen Verbindungen gehört vor allem das Ozon.

Das hier beschriebene Forschungsvorhaben trug zu den Bemühungen, die dynamischen und photochemischen Prozesse besser zu verstehen, die zu einem Abbau der stratosphärischen Ozonschicht in den letzten Jahren geführt haben. Die in früheren Jahren in der Arktis durchgeführten Meßkampagnen (z.B. EASOE (European Arctic Ozone Experiment) und SESAME (Second European Stratospheric Arctic and Mid-Latitude Experiment)) haben einige besorgniserregende Parallelen in der Entwicklung zu dem in der antarktischen Stratosphäre führenden Ozonloch gezeigt.

Zwar blieben der Antarktis vergleichbar drastische Ozonverluste bislang aus, dennoch wurden inzwischen auch aus der Arktis starke stratosphärische Ozonverluste im Frühjahr gemessen, die z.B. im Winter 1994/95 teilweise bis zu 50 % betragen. Nach heutigem Wissen ist sowohl das Phänomen des ‚Ozonlochs‘ als auch der globale, schleichende Ozonrückgang in der Stratosphäre auf die angestiegenen Emissionen von Fluorchlorkohlenwasserstoffen (FCKWs) und Halonen (bromhaltige Verbindungen) zurückzuführen. Um weiteren Ozonabbau zu verhindern, wurde die Produktion dieser Halogenverbindungen durch politische Abkommen (z.B. ‚Montrealer Protokoll‘, 1987) zunächst schrittweise reduziert und durch weitere ratifizierte Folgevereinbarungen (z.B. ‚Kopenhagener Vereinbarung‘, 1992) ab 1996 ganz eingestellt. Aufgrund der langen atmosphärischen Lebensdauern der Halogenverbindungen von bis zu einigen Jahrzehnten, bevor sie in der oberen Stratosphäre photolytisch werden, muß aber auch in Zukunft mit starken Ozonverlusten in der Stratosphäre gerechnet werden.

Angesichts dieser zum Teil noch unverstandenen Prozesse erschien es ratsam, die chemischen Vorgänge in der polaren Stratosphäre insbesondere innerhalb und den direkt an den arktischen Polarwirbel angrenzenden mittleren Breiten im Winter und Frühjahr genauer zu untersuchen. Daher sollten in diesem Vorhaben die während der Transallflüge in den Jahren 1991 bis 1995 gewonnenen Datensätze weitergehend untersucht werden. Besondere Aufmerksamkeit galt dabei den reaktiven Halogenverbindungen (ClO, BrO, OClO) und den Stickstoffverbindungen (NO, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, ClONO<sub>2</sub>, und HNO<sub>3</sub>).

## **2.) Aufgabenstellung**

Das Ziel des Vorhabens war die weiterreichende Interpretation der stratosphärischen Spurenstoffe, die mit der Differentiellen Optischen Absorptionsspektroskopie (DOAS) im ultravioletten Spektralbereich auf dem Forschungsflugzeug Transall C-160 in den Wintern 1991/92 bis 1994/95 durchgeführt wurden. Die folgenden Fragestellungen sollten u.a. von dem Projektnehmer MPI/Mainz mit Hilfe der durch das DOAS-UV Instrument und anderer an Bord der Transall gewonnener Datensätze eingehender untersucht werden:

- 1.) Ausgehend von den bisherigen Auswertungen sollten die  $O_3$ ,  $NO_2$  und OCIO-Messungen mit den entsprechenden Messungen der anderen Arbeitsgruppen (IUP, FZ-K, DLR) verglichen werden und anhand von Fallstudien ausgezeichnete meteorologische Situationen näher untersucht werden. Insbesondere zählte dazu die Interpretation der zahlreichen mit der Transall gemessenen geographischen Breitenschnitte von  $NO_2/HNO_3$  (und  $ClNO_3$  in Bezug auf den  $NO_2$ -Gehalt in  $ClNO_3$ ). Insbesondere anhand von Fallstudien sollten – unter Einbeziehung von 3-dimensionalen photochemischen Modellrechnungen - dynamische Einflüsse auf die Breitenabhängigkeit der  $NO_2$  – Säule näher untersucht werden.
- 2.) Mit den OCIO-Säulendichtemessungen im arktischen Polarwirbel und (wie sich nach Verbesserung der Auswertestrategie in dem Forschungsvorhaben auch zeigte) in den umgebenden Randgebieten sollte die Prozesse der Chloraktivierung und die Halogenchemie genauer untersucht werden.
- 3.) BrO-Messungen: Nach Verbesserungen der BrO-Auswertestrategie sollte der bestehende BrO-Datensatz mit anderen ballon- und bodengestützten Messungen verglichen werden. Anhand dieser Messungen sollte – unter Einbeziehung der OCIO-Messungen, sowie photochemischen Modellrechnungen – die stratosphärische Bromchemie näher charakterisiert werden.

## **3.) Durchgeführte Arbeiten**

Insbesondere auf folgenden Gebieten konnten in dem Forschungsvorhaben wichtige Fortschritte erzielt werden:

### **(1) Verbesserung der DOAS-Auswertestrategie**

Die Spektrenauswertung erfolgte mit einem nichtlinearen Fitalgorithmus. Bei der Auswertung der Meßspektren wurde dabei üblicherweise eine Reihe von Referenzspektren (z.B. von  $O_3$ ,  $NO_2$ , BrO, OCIO,  $O_4$ , usw.) simultan mit einem sogenannten Fraunhoferreferenzspektrum an das Meßspektrum angepaßt. Die Verwendung eines Fraunhoferreferenzspektrums, das bei hochstehender Sonne gewonnen wurde, ist notwendig, um die im Vergleich zu den optischen Dichten der zu messenden Spurenstoffe viel dichteren solaren Fraunhoferabsorptionslinien aus dem Meßspektrum zu eliminieren. Die dabei mit entfernten Spurenstoffabsorptionen des Fraunhoferreferenzspektrums wurden durch unterschiedliche Verfahren bestimmt. Näheres zur Auswertung der Meßspektren findet man in den verschiedenen Publikationen von Pfeilsticker et al. [1999] und Grendel [1997].

## (2) Interpretation der O<sub>3</sub>-, NO<sub>2</sub>-, OCIO- und BrO-Daten

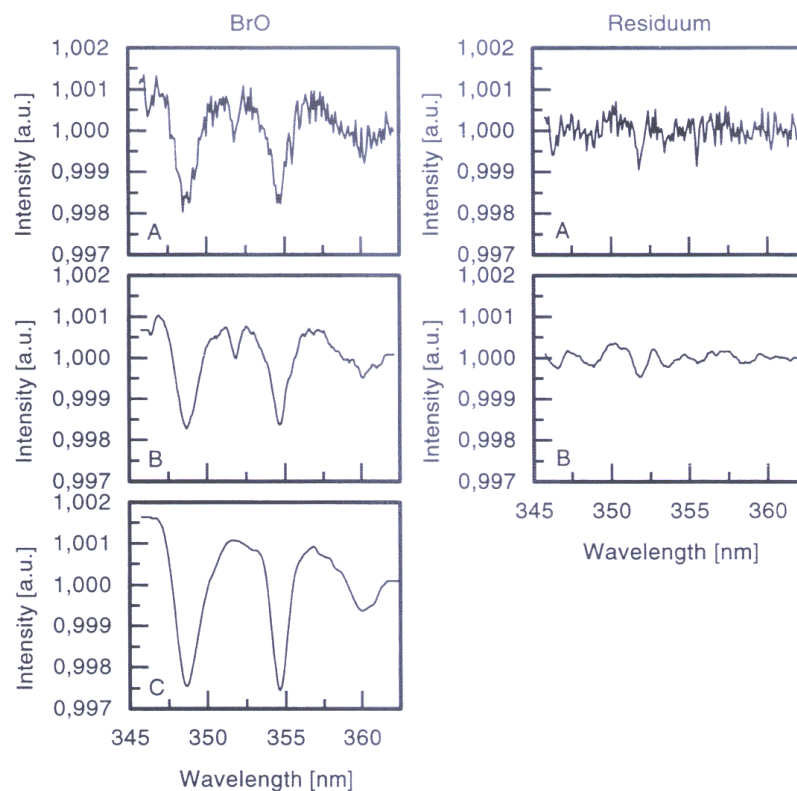
Durch Vergleich des O<sub>3</sub>-, NO<sub>2</sub>-, OCIO- und BrO-Datensatzes mit den Messungen der anderen Untergruppen konnte unter Einbeziehung von photochemischen Modellrechnungen eine weiterreichende Interpretation der Daten gewonnen werden. Dies umfaßt sowohl strahlungstransportbedingte Effekte (siehe Kapitel 4.3, 4.5), wie chemische Vorgänge. Insbesondere wurden die Datensätze der einzelnen Winter untereinander verglichen (Kapitel 4.6, 4.7, 4.8)

## 4.) Ergebnisse

In diesem Kapitel sollen nun wichtige Ergebnisse des Forschungsvorhabens vorgestellt werden. Weiterreichende Einzelheiten sind in den in Kapitel 6 aufgeführten wissenschaftlichen Berichten und Publikationen nachlesen.

### 1.) Verbesserung der BrO-Auswertung

Aufgrund der geringen optischen Dichten von BrO, sowie den im Spektralbereich von 345 – 360 nm überlappenden Absorptionen von O<sub>3</sub> und NO<sub>2</sub> (die außerdem temperaturabhängig sind), sowie den ‚Ring-Strukturen‘ stellt diese Auswertung immer noch

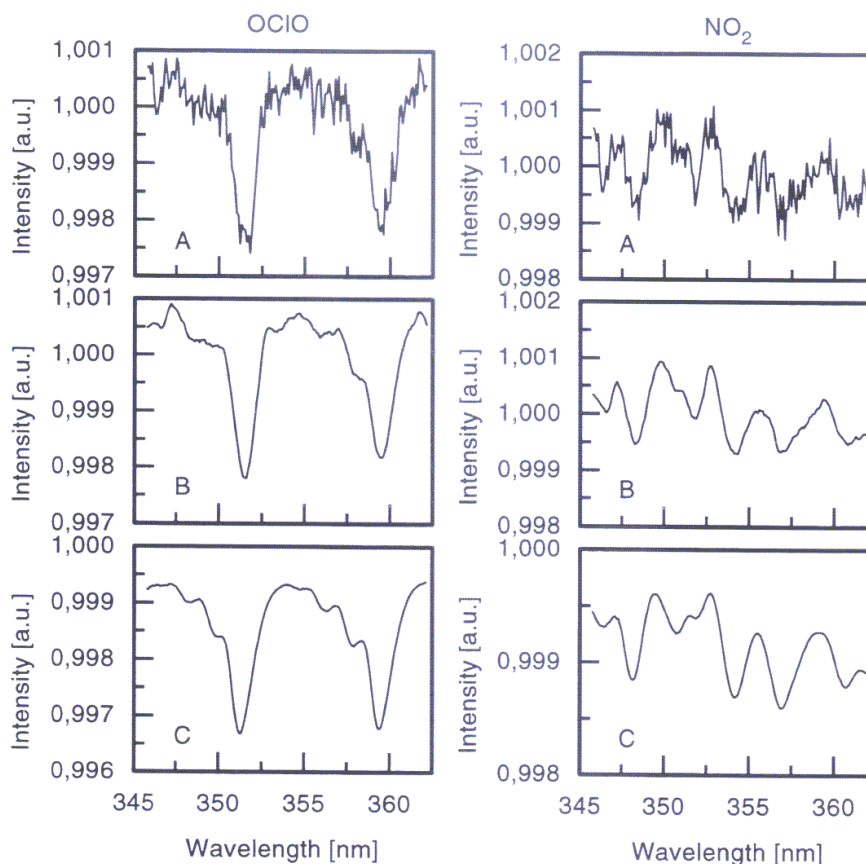


**Abbildung 1** Beispiel für das Ergebnis einer BrO-Auswertung mit Residuum. Oben links: Das vom Auswerteprogramm produzierte Spektrum, rechts oben die entsprechende Reststruktur, mittig gezeigt das durch Mittelung über acht benachbarte Kanäle erhaltene Spektrum und unten links das benutzte BrO-Laborspektrum

eine große Herausforderung dar. Durch Anwendung neuer Auswertelgorithmen, sowie Verwendung hochaufgelöster, temperaturabhängiger Labor-Referenzspektren konnte die BrO-Auswertung entscheidend verbessert werden. Als Beispiel ist in Abbildung 1 eine komplette BrO-Auswertung gezeigt.

## 2.) Verbesserung der OCIO-Auswertung

Ebenso konnte die OCIO- (sowie die NO<sub>2</sub>-) Auswertung durch Anwendung neuer Auswertelgorithmen, sowie Verwendung hochaufgelöster, temperaturabhängiger Labor-Referenzspektren an wichtigen Stellen verbessert werden. Als Beispiel ist in Abbildung 2 eine komplette OCIO- (links) und NO<sub>2</sub>-Auswertung (rechts) gezeigt.

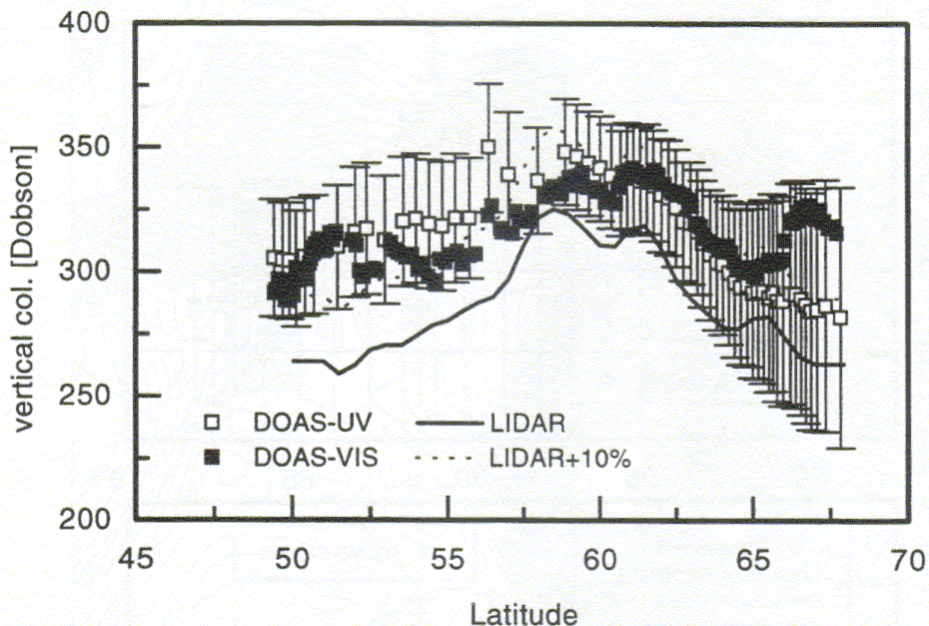


**Abbildung 2** Beispiel für das Ergebnis der OCIO- (links) und NO<sub>2</sub>-Auswertung (rechts) im Wellenlängenbereich 346 – 362 nm. Oben das ausgewertete Spektrum, das durch Mittelung über acht benachbarte Kanäle erhaltene Spektrum (Mitte) und die benutzten Laborspektren (unten).

## 3) Vergleich der DOAS-UV-Säulendichten mit anderen Messungen

Im Rahmen des Vorhabens wurde ein umfangreicher Vergleich der von DOAS gemessenen Säulendichten mit anderen Messungen durchgeführt. Abbildung 6 zeigt einen exemplarisch den Vergleich der O<sub>3</sub>-Säulendichten mit den LIDAR-Ozondaten für den 11.1.95. Man erkennt, daß erst die um ca. 10% korrigierten LIDAR-Meßwerte

(gestrichelte Linie) mit den DOAS-Meßwerten innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmen, da die LIDAR-Daten kein troposphärisches Ozon beinhalten.

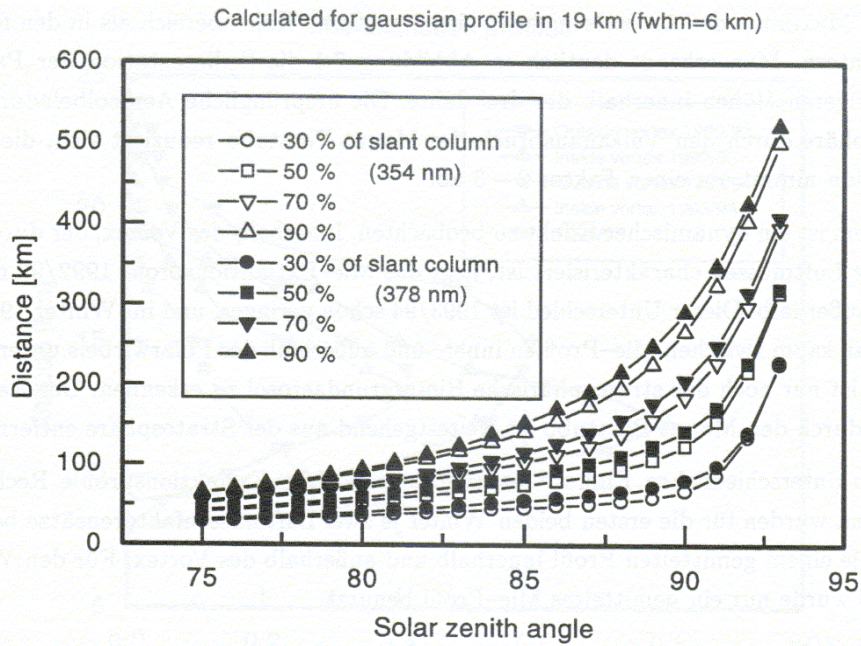


**Abbildung 3** Vergleich der DOAS-Ergebnisse mit den Heidelberger DOAS-vis-Messungen und den LIDAR-Daten für den Flug am 11.1.95 von Manching nach Kiruna. Die LIDAR-Daten beinhalten kein troposphärisches Ozon unterhalb der Flughöhe (ca. 7 km), während die DOAS-Daten die Gesamtsäule widerspiegeln. Die um den troposphärischen Anteil von ca. 10% korrigierten LIDAR-Meßwerte (gestrichelte Linie) stimmen mit den DOAS-Meßwerten innerhalb der Fehlergrenzen überein.

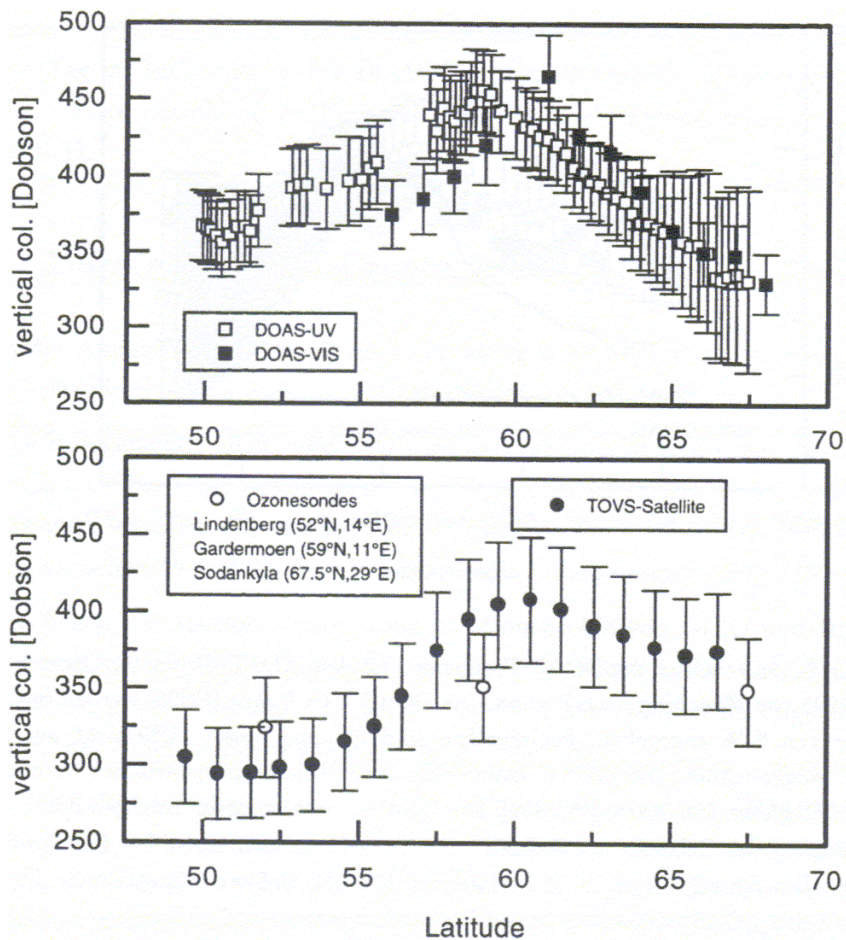
#### 4.) Fallstudien hinsichtlich der dynamischen Beeinflussung von Streulichtmessungen

Weiterhin wurde anhand von Fallstudien die dynamische Beeinflussung von Streulichtmessungen untersucht, insbesondere die Interpretation von den gemessenen schrägen Säulendichten und deren Vergleichbarkeit mit anderen Messungen und Meßtechniken. Ein Problem, das sich dabei – gerade am Polarwirbelrand – ergeben kann, ist das große horizontal ausgedehnte Meßvolumen. Für die Interpretation von DOAS-Streulichtmessungen ist nicht nur des Sonnenzenitwinkel, sondern auch der Azimutwinkel, d.h. die Blickrichtung von Bedeutung. Je tiefer die Sonne steht, desto größer wird das horizontale Meßvolumen. Abbildung 3 zeigt Ergebnisse von Strahlungstransportrechnungen, die belegen, daß für große Sonnenzenitwinkel das Meßvolumen in der Atmosphäre horizontal bis auf mehrere hundert Kilometer ausgedehnt sein kann.



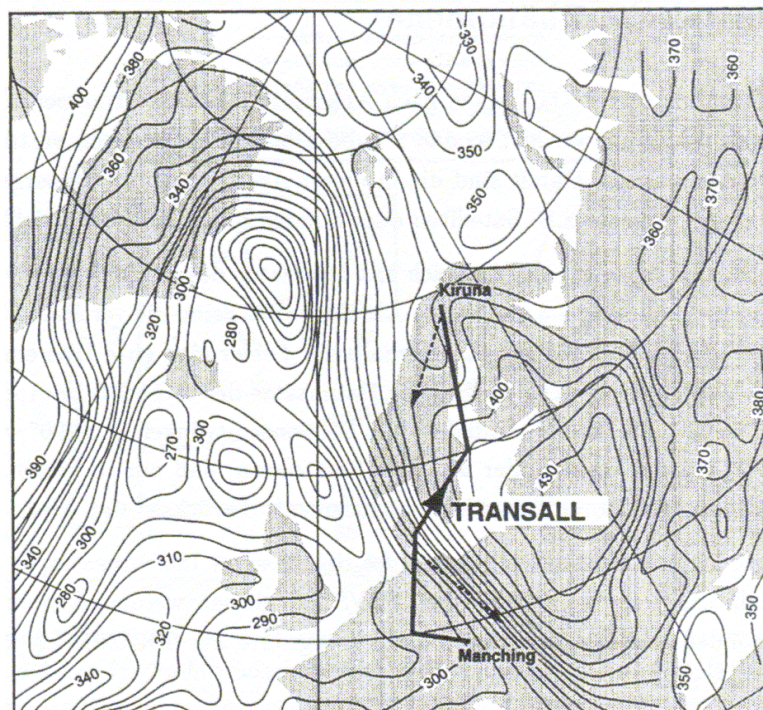


**Abbildung 4** Horizontale Ausdehnung des Meßvolumens. Dargestellt ist, bis zu welchem horizontalen Abstand vom Meßort wieviel Prozent des Spurenstoffs nachgewiesen werden.



**Abbildung 5** Vergleich der DOAS-Ozonmessungen am 27.1.93 von Manching nach Kiruna mit Satellitenmessungen und Ozonsonden

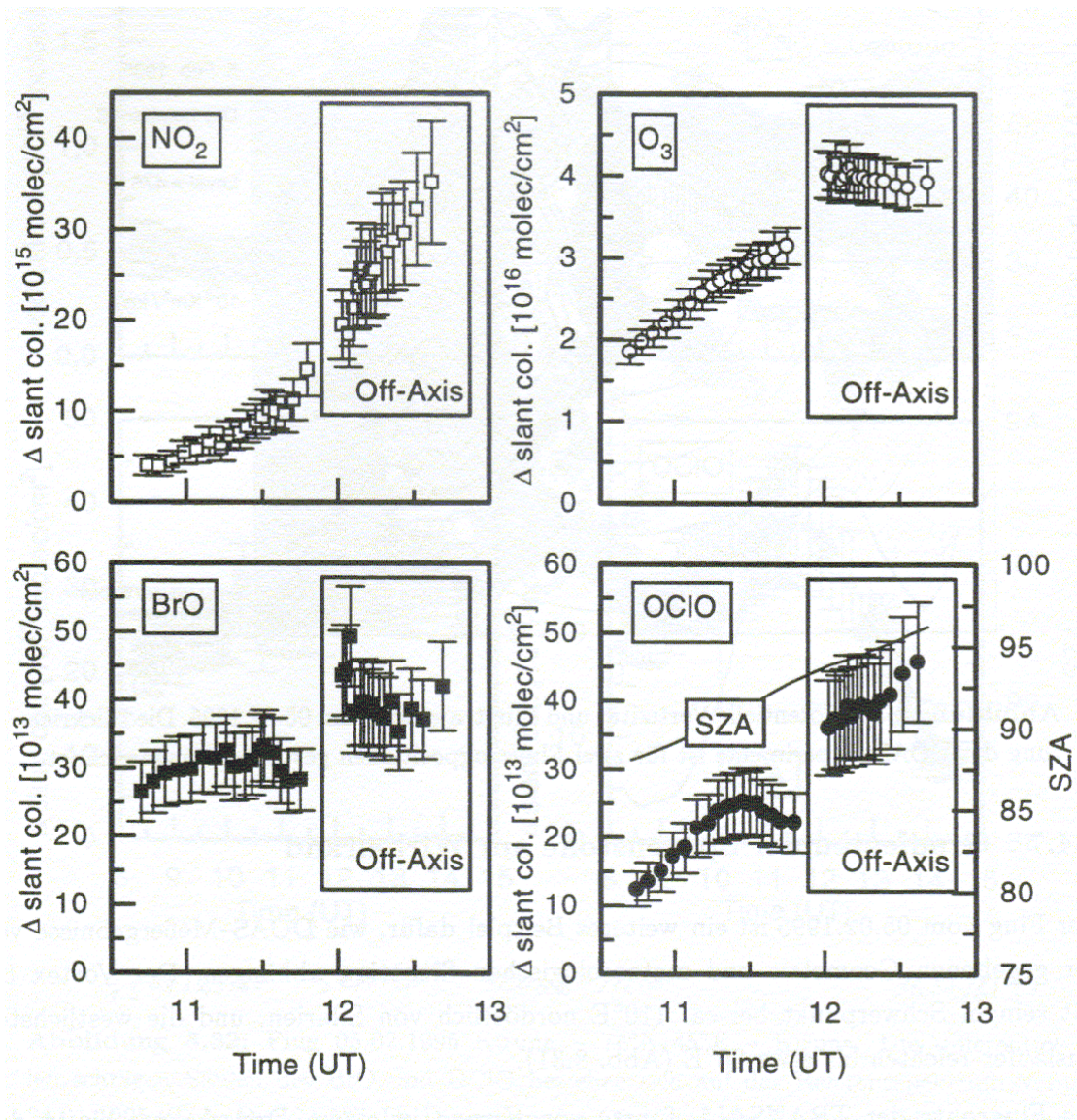
Gerade bei Gradienten in den Säulendichten der Spurenstoffe wie z.B. am Polarwirbelrand, gestaltet sich die Umrechnung von schrägen in vertikale Säulendichten schwierig. Abbildung 5 zeigt exemplarisch die O<sub>3</sub>-Säulendichte bei einem Flug von Manching nach Kiruna, wobei die Polarwirbelgrenze bei etwa 58° N überflogen wurde. Bei diesem Flug liegen die DOAS-Ozonwerte gegenüber den Satelliten- und Sondenmeßwerten um bis zu 50-60 DU zu hoch. Lediglich der qualitative Verlauf der Säulendichten entlang der Flugroute und das Maximum bei ca. 58°N entsprechen den Satellitenmessungen. Eine Ursache für diese Abweichung ist eine zeitliche Differenz zwischen DOAS- und TOMS-Überflug, d.h. die Luft ist unter Umständen transportiert worden. Dazu kommt aber noch ein extremer Gradient in den Ozonsäulen (zu erkennen in Abbildung 6). Berücksichtigt man die „Blickrichtung“ der DOAS-Experimente, d.h. den Sonnenazimutwinkel und die horizontale Ausdehnung des Meßvolumens (Abbildung 4), so sind die höheren vertikalen Säulen der DOAS-Experimente zu verstehen.



**Abbildung 6** Verteilung der Ozonsäulendichte über der Nordhemisphäre am 27. Januar 1993 nach dem satellitengetragenen Instrument TOVS. Ebenfalls eingezeichnet sind die Flugrouten der Transall (durchgezogene Linie) und die Blickrichtung der DOAS-Experimente zu Beginn und gegen Ende der Beobachtung (gestrichelt).

#### 4.) Interpretation der Off-Axis-Messungen

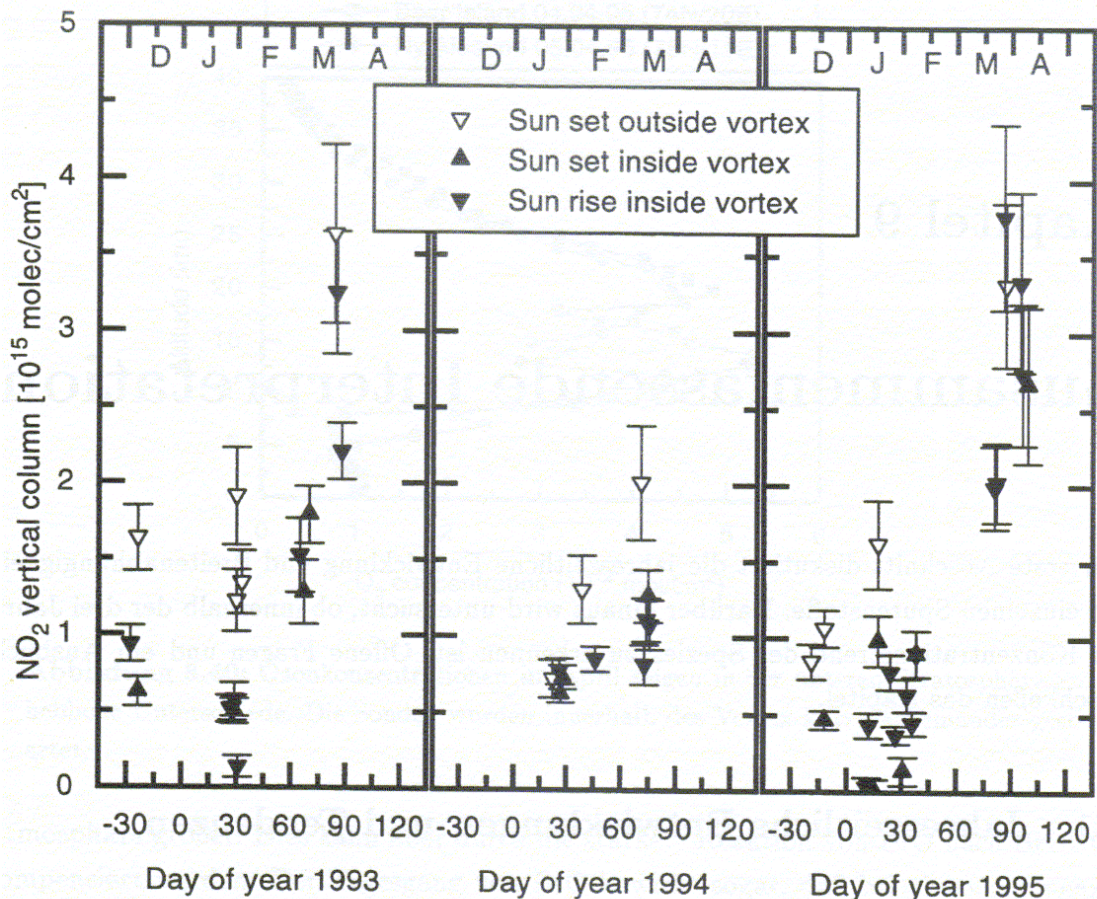
Gegen Ende des Fluges am 3.2.95, der vollständig innerhalb des Polarwirbels verlief, wurde die Off-Axis-Einkoppeloptik ab einem Sonnenzenitwinkel von  $93^\circ$  benutzt. Dabei zeigte die Quarzfaser nicht senkrecht nach oben, sondern unter einem Winkel von  $80^\circ$  zum Zenit in Richtung Sonne. Hierbei konnten bis zu einem Sonnenzenitwinkel von  $96^\circ$  noch Spektren mit ausreichender Lichtintensität aufgenommen werden. In Abbildung 7 sind die Verläufe der differentiellen schrägen Säulendichten der gemessenen Spurenstoffe dargestellt. Deren unterschiedliche Fortsetzung nach Umbau von normaler zur Off-Axis-Einkopplung läßt Rückschlüsse auf die Höhenprofile zu. Für diese Strahlengeometrie ist Mehrfachstreuung nicht mehr zu vernachlässigen. Allerdings ist bei Sonnenzenitwinkeln von  $93^\circ$  bis  $96^\circ$  auch der Einfluß horizontaler Konzentrationsgradienten erheblich.



**Abbildung 7** Off-Axis-Messung am 3.2.95. Die in den Kästen eingerahmten Meßwerte sind mit der Off-Axis-Geometrie gemessen worden.

## 5.) Entwicklung der Denoxifizierung innerhalb der verschiedenen Winter

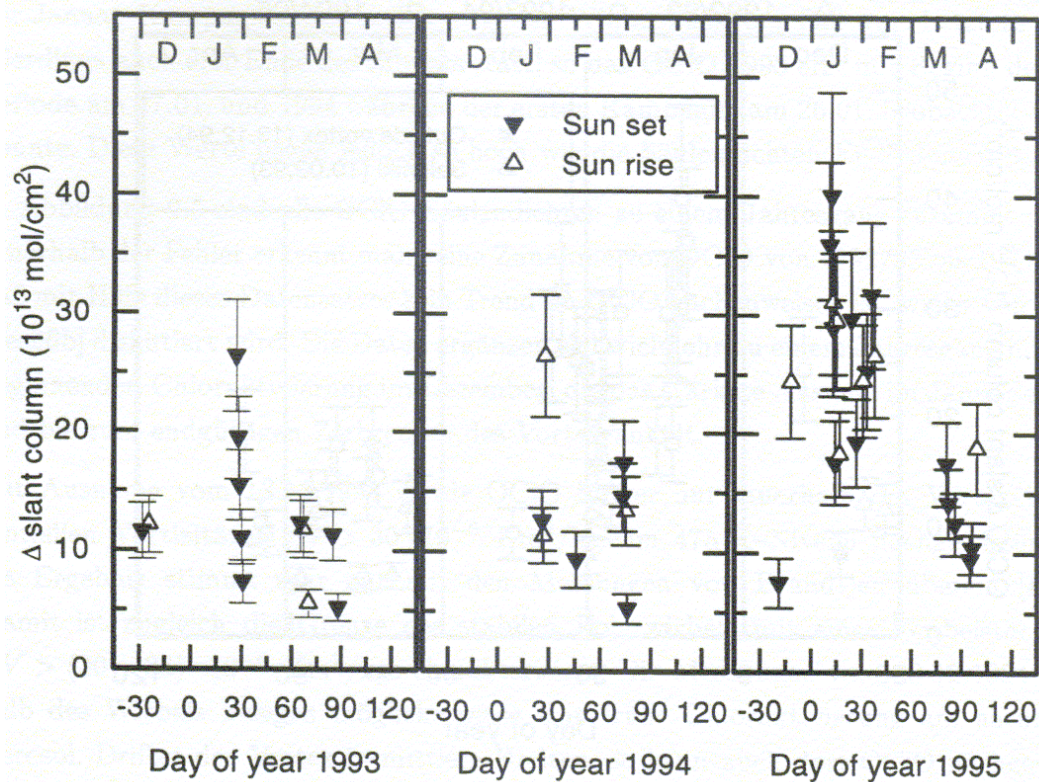
Für einen Vergleich von  $\text{NO}_2$ -Säulen muß man sich wegen des Einflusses des Tageschemas auf einen Sonnenzenitwinkel (SZW) beschränken. Hierbei wurde  $\text{SZW}=88^\circ$  gewählt. Dies stellt einen Kompromiß dar, der einerseits einen möglichst großen Lichtweg und somit eine große differentielle optische Dichte gewährleistet, andererseits den Einfluß von der Tageschemie und der damit verbundenen Ungenauigkeit im Luftmassenfaktor möglichst gering hält. Abbildung 8 stellt die Tageswerte der einzelnen Jahre zusammen. Für alles Winter ist der typische  $\text{NO}_2$ -Jahresgang zu erkennen: Von Dezember bis Anfang Februar sind in den nördlichen Breiten die  $\text{NO}_2$ -Säulen reduziert ( $<1 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  innerhalb des Polarwirbels und gegenüber Werten außerhalb des Polarwirbels um Faktor 1.5 bis 1.6 reduziert). Ab Mitte Februar beginnt die Renoxifizierung mit ansteigenden  $\text{NO}_2$ -Säulen ( $3 - 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  im April, wobei ein Unterschied zwischen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels nicht mehr auszumachen ist). Gleichzeitig sind die Abendwerte höher als die Morgenmessungen, was durch den durch die  $\text{N}_2\text{O}_5$ -Photolyse verursachten Tagesgang von  $\text{NO}_2$  zu erklären ist.



**Abbildung 8** Entwicklung der  $\text{NO}_2$ -Säulendichte über die drei Winter. Die vertikalen Säulen sind für einen Sonnenzenitwinkel von  $88^\circ$  ermittelt worden. Offene/geschlossene Symbole bezeichnen Messungen außerhalb/innerhalb des Polarwirbels. Zusätzliche Unterscheidung zwischen Sonnenaufgang- und -untergang durch unterschiedliche Dreiecke.

## 6.) Interpretation der OCIO-Messungen

Abbildung 9 zeigt einen Überblick über die während der drei Winter gemessenen OCIO-Säulendichten. Ein systematischer Unterschied zwischen Morgen- und Abendmessungen, wie es bei  $\text{NO}_2$  der Fall ist, ist nicht zu erkennen. In allen drei Wintern ist eine Halogenaktivierung zu erkennen, wobei der Beginn der Periode der Halogenaktivierung mit dem ersten Auftreten von PSCs korreliert ist, jedoch nach dem letzten möglichen Auftreten von PSCs auch nach mehreren Wochen noch eine Halogenaktivierung nachgewiesen werden kann. Auch außerhalb des Polarwirbels konnte in seltenen Fällen OCIO nachgewiesen werden. Dieses Auftreten kann mit heterogener Bromchemie, die am kalten stratosphärischen Hintergrundaerosol abläuft, erklärt werden [Erle et al., 1998].



**Abbildung 9** OCIO im Gesamtüberblick über die drei Winter. Aufgetragen sind die pro Flug maximalen schrägen Säulendichten (bis zu einem Sonnenzenitwinkel von  $92^\circ$ ).

## 7.) Interpretation der BrO-Messungen

Eine Zusammenstellung der BrO-Werte gestaltet sich schwieriger, da der BrO-Gehalt der Referenzspektren im Gegensatz zu OCIO nicht zu vernachlässigen ist und nur bestimmt werden kann. Daher beziehen sich alle angegebenen Säulendichten auf Referenzspektren, die bei kleinen Sonnenzenitwinkeln (i.A.  $<60^\circ$ ) aufgenommen wurden.

Aufgrund des Einflusses der Tageschemie (siehe Punkt 5) wurden auch bei den hier gezeigten BrO-Säulen der SZW von  $88^\circ$  gewählt. Die „mindest“-schrägen Säulen streuen relativ stark und betragen  $(17-60) \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ . 3 Messungen, die allesamt am Morgen innerhalb des Polarwirbels stattfanden, stechen mit vergleichsweise hohen Werten hervor (10.3.93, 28.194, 20.12.94), obwohl die Messorte und Jahreszeiten völlig unterschiedlich sind. Modellrechnungen für den 10.3 ergeben, daß diese hohen BrO-Werte mit „Standardchemie“ nicht erklärt werden können bzw. die mitunter besonderen Mechanismen, die zu relativ hohen BrO-Säulendichten führen, noch nicht richtig verstanden sind.

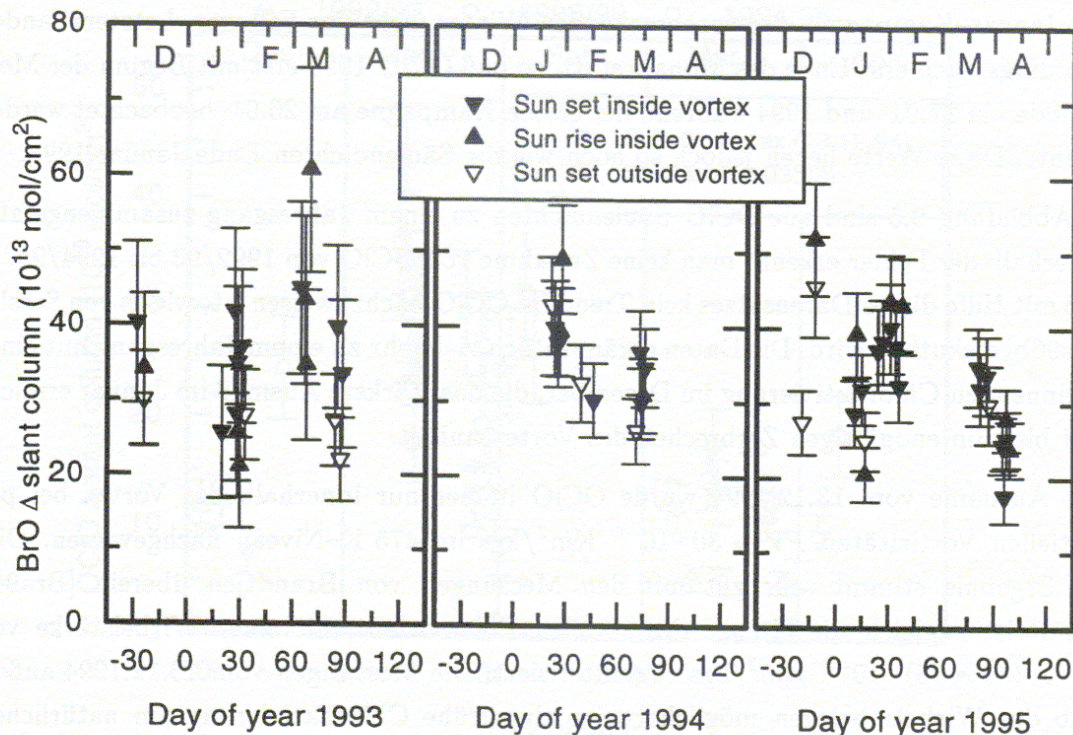
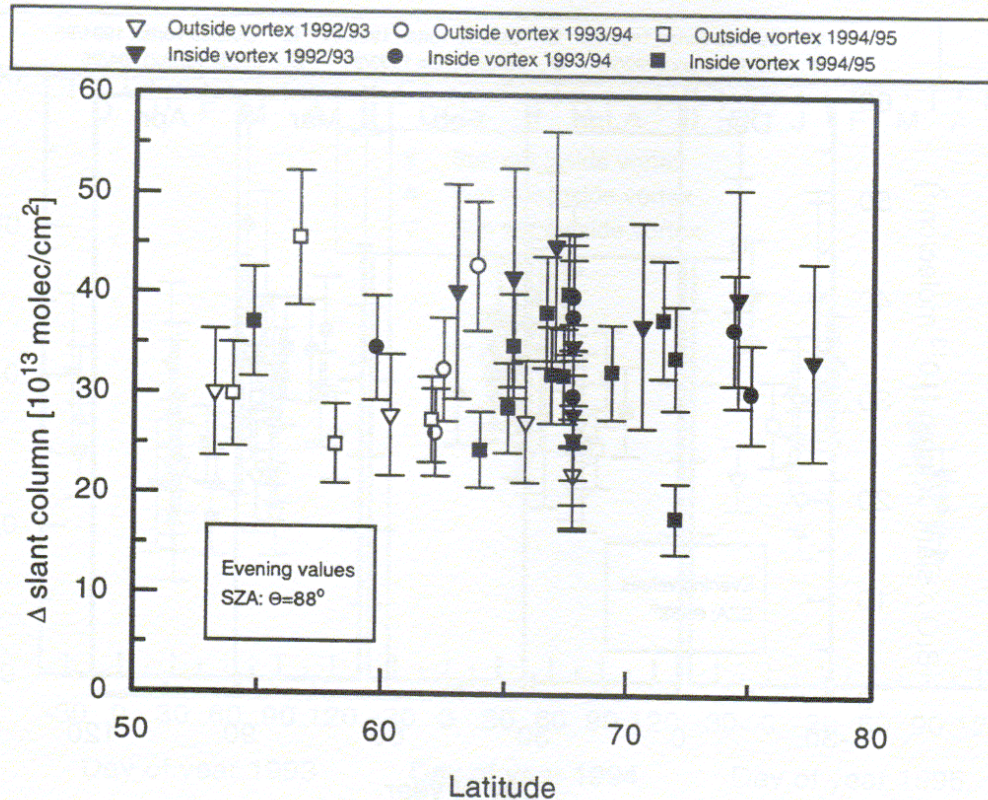


Abbildung 10 Jahresüberblick über die differentiellen schrägen BrO-Säulen der Winters 92/93 bis 94/95. Es sind Abend- und Morgenwerte mit einem Sonnenzenitwinkel von  $88^\circ$  dargestellt (Fraunhofer-Referenzspektrum bei SZW= $51^\circ$  aufgenommen).

In Abbildung 11 sind alle BrO-Werte von Abendmessungen (SZW= $88^\circ$ ) gegen den Breitengrad aufgetragen. Während des Winters ist in keinem Jahr zwischen  $54^\circ$ - $78^\circ$  N eine Breitenabhängigkeit der BrO-Säulen zu erkennen, wobei sich als Mittelwert eine BrO-Säule von  $30 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  ergibt. Der Mittelwert für die Messungen innerhalb des Wirbels liegt geringfügig höher ( $31 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ ). Der Einfluß von heterogenen Reaktionen auf die BrO-Chemie scheint zumindest auf die differentielle schräge Säule in der Dämmerung gering zu sein und ist auf diese Weise nicht ableitbar.



**Abbildung 11** Breitenabhängigkeit der BrO-Säulendichte.

## **5.) Wissenschaftliche Veröffentlichungen**

1. Burrows, J.P., M. Eisinger, A. Richter, V. Rozanov, D. Perner, E. Hegels, and K. Chance, Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) Measurements of OClO over Antarctica 1995, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 661-664, 1998
2. Erle, F., A. Grendel, D. Perner, K. Pfeilsticker, and U. Platt, Evidence of heterogeneous bromine chemistry on cold stratospheric sulfate aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 4329- 4332, 1998.
3. Grund, A., A. Grendel, R. Brandtjen, D. Perner, T. Klüpfel, W. Renger, and M. Wirth, Halogenoxide observations in the presence of PSCs from the TRANSALL, Proc. 4. European symposium, Schliersee, Bavaria, Germany, September 1997.
4. Grund, A., T. Klüpfel, A. Grendel, B. Krug, and D. Perner, Ozone depletion potential from stratospheric OClO and BrO observations during arctic winters 1992-96 and the comparison with observed ozone columns, Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, L'Aquila (Italien), 12-21 Sept. 1996, 209-212, 1998
5. Grendel, A., Flugzeuggetragene Messungen stratosphärischer Spurenstoffe mittels DOAS in den Wintern 92/93 bis 94/95, Dissertation, Universität Mainz, 1997.

6. Pfeilsticker, K., C.E. Blom, R. Brandtjen, H. Fischer, N. Glatthor, A. Grendel, T. Gulde, M. Höpfner, D. Perner, Ch. Piesch, U. Platt, W. Renger, J. Sessler, and M. Wirth, Aircraft-borne Detection of the Stratospheric Column Amounts of O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, OCIO, ClNO<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub>, and Aerosols around the Arctic Vortex (79°N to 39°N) during Spring 1993, 1. Observational data, *J. Geophys. Res.*, 102, 10801-10814, 1997.