

## **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 - Russische Grenze - Kiruna	PSC's	62±5°N (innerhalb)
13.1.92	Kiruna - Russische 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.